

μ SR-Untersuchungen an den ferromagnetischen Materialien Kobalt, Gadolinium, Eisen und Nickel

INAUGURAL-DISSERTATION

zur Erlangung der philosophischen Doktorwürde
vorgelegt
der Philosophischen Fakultät II der Universität Zürich

von

HEINZ GRAF
von Grub (AR)

Begutachtet von Herrn Prof. Dr. W. Kündig



Juris Druck + Verlag Zürich
1980

1981



Digitized by the Internet Archive
in 2026

μ SR-Untersuchungen an den ferromagnetischen Materialien Kobalt, Gadolinium, Eisen und Nickel

INAUGURAL-DISSERTATION

zur Erlangung der philosophischen Doktorwürde
vorgelegt
der Philosophischen Fakultät II der Universität Zürich

von

HEINZ GRAF
von Grub (AR)

Begutachtet von Herrn Prof. Dr. W. Kündig



Juris Druck + Verlag Zürich
1980



ISBN 3 260 04867 7

INHALTSVERZEICHNIS

I.	Einleitung	5
II.	Messmethode und Messapparatur	9
2.1.	Erzeugung und Eigenschaften positiver Myonen	9
2.2.	Messmethode	12
2.3.	Apparatur	15
2.3.1.	Magnetfelder	18
2.3.2.	Detektoren	19
2.3.3.	Elektronik	20
2.3.4.	Eichung der Zeitskala	23
2.3.5.	Moderator	24
2.3.6.	Kollimatoren	25
2.3.7.	Kryostat	25
2.3.8.	Ofen	26
III.	Experimente	28
3.1.	Kobalt	28
3.1.1.	Das Magnetfeld am Myonort in Ferromagneten	32
3.1.2.	Messungen	35
a)	Messungen ohne externes Magnetfeld	35
b)	Messungen mit externem Magnetfeld	38
3.1.3.	Vorzeichenbestimmung von B_{μ} in Kobalt	40
3.1.4.	Diskussion der Messergebnisse	41
a)	Messungen ohne externes Magnetfeld	41
b)	Messungen mit externem Magnetfeld	46
3.1.5.	Folgerungen	52
3.2.	Gadolinium	53
3.2.1.	Experimentelle Ergebnisse	54
3.2.2.	Diskussion der Ergebnisse	56
3.2.3.	Folgerungen	61
3.3.	Eisen	62
3.3.1.	Experimentelle Ergebnisse	65

3.3.2.	Diskussion der Messergebnisse	69
a)	Hyperfeinfeld	69
b)	Diffusion	72
3.3.3.	Folgerungen	78
3.4.	Nickel	79
3.4.1.	Experimentelle Ergebnisse	80
3.4.2.	Diskussion der Messergebnisse	84
a)	Hyperfeinfeld	84
b)	Diffusion	87
3.4.3.	Folgerungen	90
IV.	Zusammenfassung	92
Anhang A:	Myonium	96
Anhang B:	Tabellarische Zusammenstellung der wichtigsten Eigenschaften der untersuchten Metalle sowie der wichtigsten μ SR-Ergebnisse	99
	Literaturverzeichnis	101
	Verdankungen	104

I. EINLEITUNG

Das Myon wurde im Jahre 1937 durch Anderson und Neddermeyer entdeckt¹. Die Verwendung dieses Teilchens als mikroskopische Probe zur Untersuchung der kondensierten Materie durch Festkörperphysiker und Chemiker wurde aber erst durch die Inbetriebnahme der neuen Generation von Beschleunigern mit hochintensiven Mesonenstrahlen, den sogenannten Mesonenfabriken, möglich. Obwohl Garwin, Lederman und Weinrich² schon im Jahre 1957 das erste μ SR-Experiment (Myon Spin Rotations-Experiment) bei der Entdeckung des paritätsverletzenden Zerfalls von π^- und μ^- durchführten, waren die Anwendungen in der Festkörperphysik bis etwa 1970 unbedeutend. Ab dieser Zeit entwickelt sich aber die μ SR-Technik zu einer anerkannten Methode in der Festkörperphysik und Chemie.

In den Mesonenfabriken werden hochenergetische Protonen auf ein Target geschossen. Durch Kernreaktionen entstehen neben anderen Teilchen positive Pionen. In einem Strahlführungssystem gesammelt, zerfallen diese in positive Myonen und Myonneutrinos. Wegen der Paritätsverletzung bei diesem Zerfall sind die Myonen im Ruhesystem des Pions 100% longitudinal polarisiert. Diese Tatsache, zusammen mit dem paritätsverletzenden Zerfall des Myons ($\mu^+ \rightarrow e^+ + \nu_e + \bar{\nu}_\mu$), bei dem das Positron (e^+) vorzugsweise parallel zum μ^+ -Spinvektor emittiert wird, bildet die Grundlage der μ SR-Technik.

Die positiven Myonen werden im zu untersuchenden Target gestoppt. In einem senkrecht zum μ^+ -Spin angelegten Magnetfeld präzessiert dieser mit der Larmorfrequenz $\nu_\mu = 13,55 \text{ kHz/G}$. Der asymmetrische Zerfall des Myons, welcher zu einer Korrelation zwischen der Myonspinrichtung und der Flugrichtung des Positrons führt, wird mit einer zeitdifferentiellen Methode durch den Nachweis des Zerfallspositrons beobachtet. Die Präzession des Myonspins führt zu einer Oszillation der Positronzählrate als Funktion der Zeit. Aus der Frequenz dieser Oszillationen kann das Magnetfeld am Myonort berechnet werden. Aus dem zeitlichen Ver-

halten der Präzessionsamplitude (Dämpfung) kann auf das dynamische Verhalten des Myons im Kristallgitter geschlossen werden.

Das Ziel dieser Arbeit war:

1. Der Aufbau einer geeigneten Apparatur für die μ SR-Experimente am SIN (Schweizerischen Institut für Nuklearforschung in Villigen) sowie die Durchführung der dazu notwendigen vorangehenden Testexperimente.
2. Die Messung der lokalen Magnetfelder in den ferromagnetischen Metallen Kobalt, Gadolinium, Eisen und Nickel als Funktion von Temperatur und einem extern angelegten Magnetfeld.

Anhand der Messergebnisse werden folgende Probleme diskutiert:

1. Aufenthaltsort des Myons

Der Aufenthaltsort des Myons im Kristallgitter der untersuchten Metalle ist unbekannt. Wegen der positiven Ladung des Myons wird angenommen, dass es sich vorwiegend auf Zwischengitterplätzen aufhält. Aus Symmetrieüberlegungen und Messungen mit anderen leichten interstitiellen Teilchen (Wasserstoff, Deuterium, Tritium) ergibt sich, dass ein paar wenige Plätze bevorzugt werden. Die vorliegenden Messungen ergeben, dass sich das Myon in Kobalt und Gadolinium am oktaedrischen Zwischengitterplatz aufhält. In Eisen diffundiert das Myon vermutlich über den tetraedrischen Zwischengitterplatz. In Nickel kann aus den Messungen nicht auf den Aufenthaltsort geschlossen werden. Ergebnisse aus Messungen in anderen fcc-Metallen deuten aber darauf hin, dass sich das Myon in diesem Kristallgittertyp am oktaedrischen Zwischengitterplatz aufhält³.

2. Einfluss des Dipolfeldes der lokalisierten magnetischen Momente

In den untersuchten ferromagnetischen Metallen erzeugen die an den Gitterplätzen lokalisierten, parallel ausgerichteten 3d- und 4f-Elektronen-

momente ein Dipolfeld am Aufenthaltsort des Myons. Dieses hängt von der Orientierung der magnetischen Dipolmomente bezüglich des Kristallgitters ab. Sowohl in Kobalt als auch in Gadolinium ist diese Orientierung von der Temperatur abhängig. Die gemessene Temperaturabhängigkeit der Präzessionsfrequenz in Kobalt und Gadolinium weicht stark von derjenigen in Eisen und Nickel ab. Diese Unterschiede werden durch den Beitrag des Dipolfeldes zum gesamten Magnetfeld verursacht. Die Berücksichtigung des Dipolfeldbeitrags ermöglichte in Gadolinium den Winkel zwischen der hexagonalen c-Achse und der Richtung der lokalisierten magnetischen Momente als Funktion der Temperatur zu bestimmen.

3. Hyperfeinfeld

In ferromagnetischen Metallen sind die Leitungselektronen polarisiert. Da sie am Myonort eine bestimmte Aufenthaltswahrscheinlichkeit haben, erzeugen diese über die Kontaktwechselwirkung einen weiteren Beitrag zum lokalen Magnetfeld. Dieses als Hyperfeinfeld bezeichnete Feld kann aus den μ SR-Daten berechnet werden. Die daraus berechnete Elektronenspindichte am Myonort kann mit Ergebnissen aus Neutronstreuexperimenten und mit theoretischen Rechnungen verglichen werden. Aus einem solchen Vergleich erhält man eine Information über die Störung des Elektronengases durch das Myon.

4. Diffusionsverhalten des Myons

Das Myon kann als ein leichtes Wasserstoffisotop ($m_{\mu} = 1/9 m_p$, m_p = Protonenmasse) aufgefasst werden. Das Diffusionsverhalten von Wasserstoff und anderen leichten interstitiellen Teilchen ist gegenwärtig Gegenstand intensiver experimenteller Untersuchungen. Die Resultate sind von grösster praktischer und theoretischer Bedeutung. Prinzipiell ermöglicht die μ SR-Technik von verschiedenen Theorien⁴ postulierte Isotopieeffekte der Aktivierungsenergie und der Diffusionskonstante zu messen. Für Eisen und Nickel werden Werte für Aktivierungsenergie und Diffusionskonstante angegeben. Im Falle von Eisen werden zudem verschiedene Diffusionsmechanismen des Myons diskutiert. Da festgestellt wurde,

dass Verunreinigungen im untersuchten Material das Diffusionsverhalten des Myons beeinflussen, ist eine Aussage über Isotopieeffekte zur Zeit aber noch nicht möglich.

Die Arbeit ist in folgende Kapitel gegliedert: Nach der Einleitung sind in Kapitel II die Messmethode und die Messapparatur beschrieben. In Kapitel III werden die Messergebnisse dargestellt und die erhaltenen Resultate interpretiert. Vergleiche mit Ergebnissen welche mit anderen Messmethoden erhalten wurden, werden gemacht. Eine Zusammenfassung aller Resultate findet sich in Kapitel IV. Im Anhang A wird das Verhalten von Myonium in einem externen Magnetfeld beschrieben. Die dort diskutierten Frequenzen wurden zur Abschätzung der Zeitauflösung der Apparatur verwendet. Der Anhang B enthält eine tabellarische Zusammenfassung der wichtigsten Messergebnisse.

Die Experimente wurden am Schweizerischen Institut für Nuklearforschung in Villigen durchgeführt. Die Arbeit wurde vom schweizerischen Nationalfonds unterstützt.

II. BESCHREIBUNG DER MESSMETHODE UND DER MESSAPPARATUR

2.1. Erzeugung und Eigenschaften positiver Myonen

Die in dieser Arbeit beschriebene μ SR-Methode verwendet polarisierte positive Myonen als Sonden zur Untersuchung festkörperphysikalischer Eigenschaften. Am SIN stehen die Myonen in Form hochintensiver Strahlen zur Verfügung. Der Fluss beträgt etwa $6 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$. Die Polarisation des Strahls beträgt ungefähr 80%. Die Verunreinigung mit anderen Teilchen, vorallem Elektronen und Pionen ist gering.

In einem Injektorzyklotron werden Protonen auf eine Energie von 72 MeV vorbeschleunigt und in das Ringzyklotron eingeschossen. In diesem werden sie auf eine Energie von 590 MeV beschleunigt. In einem Strahlführungssystem gelangen sie im sogenannten Protonenkanal zu einer Targetstation wo sie teilweise abgebremst werden. Durch Kernreaktionen werden Neutronen und vorallem positive und negative Pionen erzeugt. Die für diese Experimente notwendigen positiven Pionen werden unter einem Winkel von 0° zur Protonenstrahlachse extrahiert. Quadrupolmagnete und ein Ablenkmagnet mit dem der Pionimpuls ($p_\pi = 200 \text{ MeV/c}$) definiert wird, führen den Strahl in den sogenannten Myonenkanal. Dieser besteht aus einem 8 m langen supraleitenden Solenoid mit einem Innendurchmesser von 12 cm und einem Magnetfeld von 50 kG in Richtung der Spulenachse. In diesem Kanal zerfallen die Pionen nach einer mittleren Lebensdauer von $(26.030 \pm 0.023) \text{ ns}$ in positive Myonen und Myonneutrinos (1).



Beim β -Zerfall des Pions ist die Parität nicht erhalten. Das Neutrino hat negative Helizität d.h. sein Spin ist antiparallel zu seiner Impulsrichtung orientiert. Aus Impuls- und Drehimpulserhaltung folgt, dass das Myon im Ruhesystem des Pions 100% rückwärts polarisiert ist. Der Im-

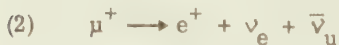
puls und die Energie des Myons sind in diesem Bezugssystem 29.79 MeV/c bzw. 4.119 MeV. Nach dem Myonkanal fokussieren wieder Quadrupolmagnete den Strahl zuerst in einen Ablenkmagneten und anschließend auf das zu untersuchende Target. Mit dem Ablenkmagnet wird der Myonimpuls eingestellt. Aus dem Impulsspektrum werden die langsamen d.h. die bezüglich der Pionimpulsrichtung rückwärts zerfallenden Myonen selektiert. Ihr Impuls beträgt $p_\mu = 105 \text{ MeV/c}$. Im Laborsystem ist der Spin dieser Myonen parallel zur Impulsrichtung orientiert. Die Polarisation des Myonstrahls beträgt 80%.

Im Folgenden sind einige Eigenschaften des Myons zusammengestellt⁵.

Tabelle I: Eigenschaften des Myons

Masse (m_μ)	105.65945(32) MeV
Spin	1/2
Lebensdauer (τ_μ)	2.197134(77) 10^{-6} s
Magnetisches Moment	$4.49047 \times 10^{-26} \text{ J/T} = 3.183340 \mu_p$
g-Faktor	2×1.0011662
Gyromagnetisches Verhältnis	$\gamma_\mu / 2\pi = 13.55374 \text{ MHz/kG}$

Am häufigsten (98.6%) zerfällt das positive Myon in ein Positron, ein Myonantineutrino und ein Elektronneutrino (2).



Auch bei diesem Zerfall ist die Parität nicht erhalten. Dies führt zu einer Korrelation zwischen Flugrichtung bzw. Spinrichtung des Myons und der Impulsrichtung des beim Zerfall emittierten Positrons.

Aus der Zweikomponententheorie für das Neutrino, welche nur eine V-A-Wechselwirkung im Hamiltonoperator für den schwachen Zerfall (2) enthält, erhält man unter Vernachlässigung der Elektronenmasse für die

Emissionswahrscheinlichkeit eines Positrons in das Energieintervall $d\varepsilon$ pro Zeiteinheit folgende energieabhängige Winkelkorrelation⁶:

$$(3) \quad I(\varepsilon, \theta) = \frac{dW(\varepsilon, \theta)}{d\varepsilon dt} = \frac{g^2 m_\mu^5}{96 \pi^3} \frac{d\Omega_e}{4\pi} \varepsilon^2 [3-2\varepsilon - (1-2\varepsilon) \cos\theta]$$

$$= \frac{1}{\tau} \frac{d\Omega_e}{2\pi} \varepsilon^2 [(3-2\varepsilon) - (1-2\varepsilon) \cos\theta] = C \varepsilon^2 (3-2\varepsilon) [1 + A(\varepsilon) \cos\theta] d\Omega_e$$

$\varepsilon = E/E_{\max}$ ist die Positronenergie in Einheiten der maximal möglichen Energie $E_{\max} = m_\mu/2 = 52.83 \text{ MeV}$, m_μ die Myonmasse, g die Kopplungskonstante der schwachen Wechselwirkung und $d\Omega_e$ das Raumwinkelement in welches das Positron emittiert wird. θ ist der Winkel zwischen Myonspinrichtung und der Richtung des Positronimpulses im Moment des Zerfalls. $A(\varepsilon)$ ist die von der Positronenergie abhängige Asymmetrie. Die konstanten Faktoren sind in der Grösse C zusammengefasst.

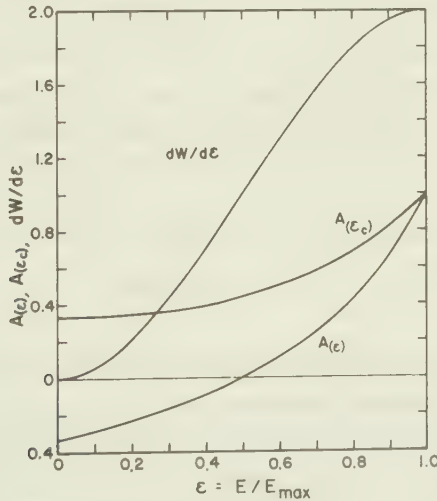


Abb. 1: Positronenspektrum $dW/d\varepsilon$ aus dem Myonzerfall.

$A(\varepsilon)$ ist die energieabhängige Asymmetrie. $A(\varepsilon_c)$ ist die Asymmetrie, wenn nur Positronen oberhalb einer scharfen Abschneideenergie ε_c nachgewiesen werden.

In der Abb. 1 sind das Positronenspektrum und der Asymmetrieparameter $A(\mathcal{E}) = (2\mathcal{E} - 1)/(3 - 2\mathcal{E})$ als Funktion von $\mathcal{E}$ dargestellt. Für $\mathcal{E} = 1$ ist die Asymmetrie $A(\mathcal{E})$ eins. Dies bedeutet, dass das Positron in Richtung des Myonspins und die beiden Neutrinos exakt antiparallel dazu emittiert werden. Für Positronenergien $\mathcal{E} > 0.5$ erfolgt der Zerfall vorzugsweise entgegengesetzt zur Myonspinrichtung ($A(\mathcal{E}) < 1$). Werden alle Positronen nachgewiesen, erhält man durch Integration von Gl. (3) über $\mathcal{E}$:

$$(4) \quad dW(\theta) = C \left(1 + \frac{1}{3} \cos \theta\right) d\Omega_e dt$$

Durch geeignete Diskrimination der niederenergetischen Positronen ist es möglich, die experimentelle Asymmetrie zu vergrößern. $A(\xi_c)$ als Funktion einer scharfen Abschneideenergie ξ_c ist ebenfalls in Abb. 1 dargestellt.

Ohne Energiediskrimination wird die Asymmetrie wegen der endlichen Winkelauflösung der Positronendetektoren kleiner als $1/3$. In Kupfer ist die experimentell bestimmte Asymmetrie 0.23. Je nach Targetmaterial kann sie aber auch beträchtlich kleiner sein. In kubischen Ferromagneten erwartet man z. B. nur $2/3$ des in Kupfer gemessenen Wertes.

2.2. Messmethode

In einem μ SR-Experiment werden polarisierte positive Myonen im zu untersuchenden Targetmaterial gestoppt (Abb. 2). Vor dem Eintritt in das Target durchquert das Myon einen Moderator (Degradier) sowie die Detektoren M_1 und M_2 . In diesem Moment wird eine Uhr gestartet. Während dem Abbremsvorgang bleibt die Polarisation erhalten. In einem senkrecht zur Anfangspolarisation des Myons orientierten Magnetfeld $\vec{B}$ präzessiert der Myonspin mit der Larmorfrequenz $\nu_\mu = \omega_\mu / 2\pi$. Nach

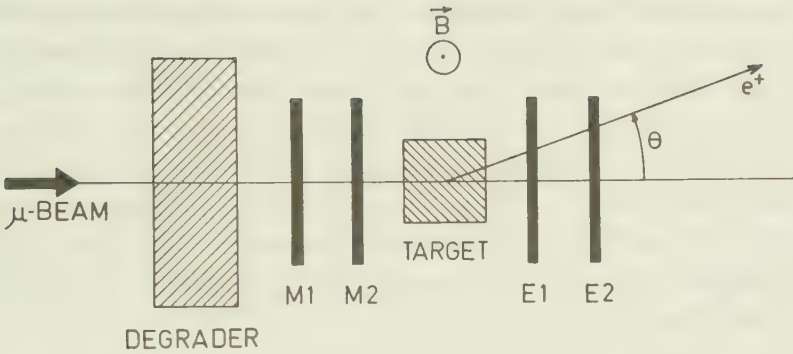


Abb. 2: Vereinfachte Targetanordnung in einem μ SR-Experiment. Der Moderator (Degrader) verlangsamt die einfallenden vorwärts polarisierten Myonen. M_1 und M_2 sind Myondetektoren, E_1 und E_2 sind Detektoren für den Nachweis des Zerfallspositrons. $\vec{B}$ ist ein senkrecht zur Anfangspolarisation des Myons angelegtes Magnetfeld.

dem Zerfall wird das dazugehörige Zerfallspositron mit der Detektoranordnung ($E_1 E_2$) nachgewiesen und die Uhr gestoppt. Das asymmetrische Zerfallsmuster rotiert mit dem Myonspin mit derselben Frequenz ν_μ . Das Zeitspektrum kann deshalb folgendermassen geschrieben werden:

$$(5) \quad I(\theta, t) = N \left\{ B + \exp(-t/\tau_\mu) [1 + AP(t) \cos(\omega_\mu t + \theta)] \right\}$$

N ist eine Normierungskonstante und B (normalerweise $< 1\%$) berücksichtigt einen konstanten Untergrund. $\exp(-t/\tau_\mu)$ beschreibt den exponentiellen Myonzerfall. A ist die Anfangspolarisation zur Zeit $t = 0$. Sie ist ein Produkt aus Strahlpolarisation, Raumwineffekten und schnellen d.h. nicht beobachtbaren Depolarisationseffekten. Die Zeitabhängigkeit der Amplitude wird durch die Funktion $P(t)$ beschrieben. Eine Abnahme

von A in Funktion der Zeit entsteht durch einen Verlust der Phasenkohärenz der präzessierenden Myonspins. Die Ursache liegt darin, dass das lokale Magnetfeld selbst zeitabhängig ist und an verschiedenen Stellen der Probe nicht exakt denselben Wert hat. Einige Myonen des betrachteten Ensembles präzessieren dann in einem etwas kleineren Feld etwas langsamer als andere in einem etwas grösseren Feld. Nach einer gewissen Zeit führt dies zu einer zufälligen Verteilung der Myonspinrichtungen und damit zu einem vollständigen Verlust der Asymmetrie. θ ist eine zu berücksichtigende Anfangsphase. Für exakte Vorwärtspolarisation zur Zeit $t=0$ ist die Phase $\theta=0$.

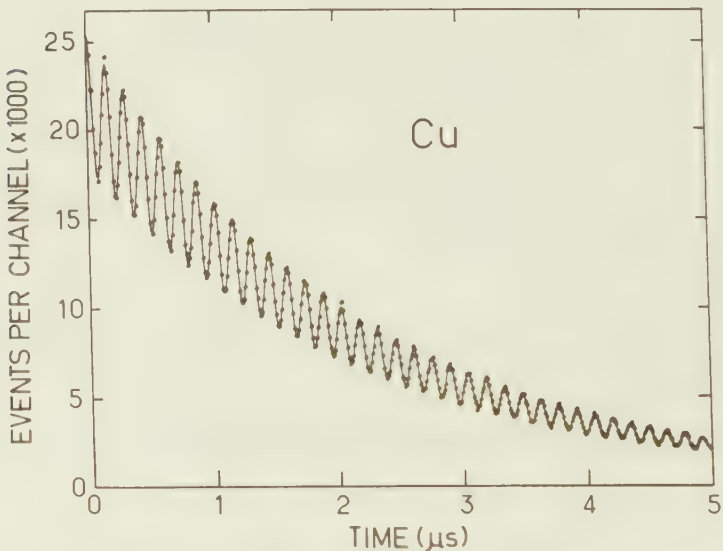


Abb. 3: μ SR-Spektrum von Kupfer in einem transversalen Magnetfeld von 500 G. Dem exponentiellen Zerfall überlagert sind die durch die Myonspinpräzession verursachten Oszillationen der Positronzählrate.

In der Abb. 3 ist ein typisches μ SR-Spektrum von Kupfer in einem transversalen Magnetfeld von 500 G dargestellt. Gegenüber der Zeit ist die

Positronenzählrate im Teleskop ($E_1 E_2$) aufgetragen. Das durch Gl. (5) beschriebene Histogramm zeigt die charakteristischen Oszillationen der Zählrate mit der Larmorfrequenz welche dem exponentiellen Abfall mit $\tau_\mu = 2.2 \mu\text{s}$ überlagert sind.

Die in Gl. (5) vorkommenden Größen A , $P(t)$ und ω_μ enthalten die Information über die Wechselwirkung des Myons mit der umgebenden Materie. Die Asymmetrie A , normiert auf einen geeigneten Standardwert, gibt Auskunft über die Anzahl Myonen, welche mit der Frequenz ω_μ präzessieren. Durch die Frequenz ω_μ ist das Magnetfeld am Myonort definiert. Die Relaxationsfunktion $P(t)$ gibt Aufschluss über das dynamische Verhalten des Myons im Kristallgitter. Eine Untersuchung von $P(t)$ in Abhängigkeit von Temperatur und Magnetfeld ermöglicht Information über Diffusionsmechanismen und Aufenthaltsort des Myons im Kristallgitter zu erhalten. Durch Vergleich solcher Ergebnisse mit Wasserstoffdiffusionsdaten erhofft man, eine Aussage über die Isotopenabhängigkeit der Diffusionskonstanten und der beteiligten Aktivierungsenergien machen zu können.

2.3. Apparatur

Im folgenden wird die Apparatur im Detail beschrieben. Die Randbedingungen für die experimentelle Anordnung werden einerseits durch den Strahl- und Experimentierbetrieb am SIN und andererseits durch verschiedene μSR -spezifische Anforderungen festgelegt. Beide sind unter den folgenden Punkten kurz zusammengefasst.

1. Da die Experimentierareale auch anderen Gruppen zur Verfügung stehen, ist die Aufbauzeit auf höchstens zwei Tage beschränkt.
2. Am SIN stehen mehrere Myonareale zur Verfügung. Den verschiedenen räumlichen und geometrischen Verhältnissen (z.B. Strahlhöhe) in diesen Arealen ist Rechnung zu tragen.

3. Das durch ein Helmholtzspulenpaar erzeugte Magnetfeld muss sowohl transversal als auch longitudinal zur Anfangspolarisation des Myons orientiert werden können. Der Uebergang von der einen zur anderen Anordnung muss rasch erfolgen können.
4. Mit dem Helmholtzspulenpaar sollen Magnetfelder bis 6000 G erzeugt werden können.
5. Die Helmholtzspulen sollen so gelagert sein, dass sie justiert werden können.
6. Das Erdfeld und eventuell vorhandene Streufelder müssen kompensiert werden können.
7. Der Targetwechsel und die Targetjustierung soll einfach und schnell durchgeführt werden können.
8. Verschiedene zusätzliche Geräte wie z.B. Kryostat, Ofen oder Goniometer sollen in der Targetregion einfach montiert werden können.
9. Um eine optimale Stoppverteilung der Myonen im Target zu haben, muss der Moderator (Degrader) fernbedient werden können. Damit der Einfluss des Magnetfeldes auf die Bahn des Myons möglichst gering bleibt, muss das Abbremsen der einfallenden Myonen unmittelbar vor der Target erfolgen.
10. Die Kollimatoren sollen an die Targetgrösse angepasst werden können.

Die Targetregion der an diese Forderungen angepassten Apparatur ist schematisch in der Abb. 4 dargestellt. Der Massstab ist unten links angegeben. Dieser Teil der Apparatur ist auf einem Gestell montiert, welches in einer Ebene senkrecht zum Myonstrahl sowohl horizontal als auch vertikal verschoben werden kann. Das ganze Gestell kann gut mit dem Hallenkran in alle Myonareale transportiert werden.

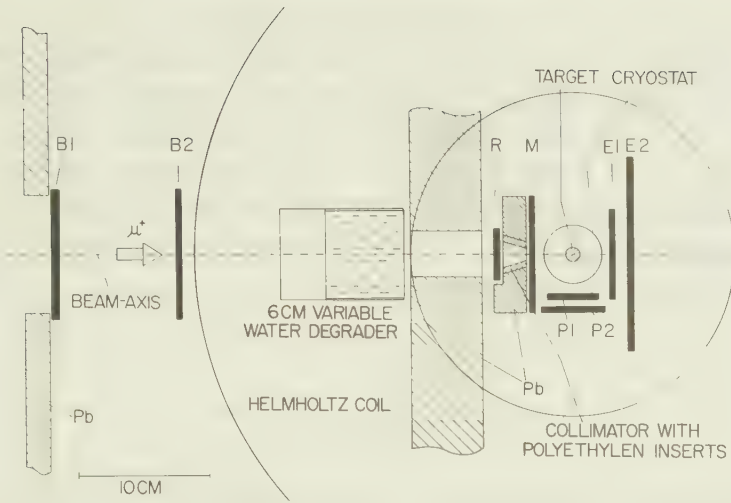


Abb. 4: Dargestellt ist die verwendete μ SR-Apparatur. Die Szintillationsdetektoren B_1 , B_2 , R , M definieren den einfallenden Myonstrahl. E_1E_2 bzw. P_1P_2 weisen die Zerfallspositronen nach. Ein Wasserdegrader bremst die Myonen ab. Das zu untersuchende Target befindet sich im Zentrum einer Helmholtzspule. Bleikollimatoren blenden den zentralen Teil des Strahls aus. Der letzte Kollimator enthält auswechselbare Einsätze, welche an die Targetgröße angepasst werden können.

Die Myonen durchqueren unmittelbar nach dem letzten Quadrupolmagnet des Strahlführungssystems einen Bleikollimator mit einer kreisrunden Oeffnung von 10 cm Durchmesser. Noch vor der Helmholtzspule sind zwei Szintillationszähler (B_1 , B_2), die den eintretenden Strahl definieren, angebracht. Zwischen den beiden Spulen (Abstand = 72 mm) ist in der Strahlachse ein zwischen 0 und 6 cm Wasserdicke einstellbarer Moderator angebracht. Damit kann die Stopprate für jede Targetdichte optimal eingestellt werden. Zwischen Target und Moderator sind weitere Kollimatoren sowie den Strahl definierende Szintillationsdetektoren eingebaut. Der letzte Kollimator ist mit auswechselbaren Einsätzen versehen. Damit kann die Größe des Strahlflecks optimal an die Targetgröße ange-

passt werden. In die Kollimatoröffnungen kann zusätzliches Moderator-material eingebaut werden. Damit wird erreicht, dass die Myonen erst unmittelbar vor dem Target vollständig abgebremst werden. Der Einfluss des Magnetfeldes auf die Myontrajektorie wird damit möglichst gering gehalten. E_1 und E_2 sowie P_1 und P_2 sind Positronteleskope, welche Zerfallspositronen in Richtung bzw. senkrecht zur Anfangspolarisation des Myons nachweisen. Details der einzelnen Komponenten werden in den anschliessenden Unterkapiteln beschrieben.

2.3.1. Magnetfelder

Für die Präzessionsexperimente wird ein Helmholtzspulenpaar verwendet. Es ist so dimensioniert, dass Felder bis 6 kG erzeugt werden können. Die Feldhomogenität ist in einem Volumen von $12 \times 12 \times 12 \text{ mm}^3$ etwa 10^{-4} . Der maximal zulässige Strom beträgt 400 A. Mit einem Ohmschen Widerstand der beiden in Serie geschalteten Spulen von 0.38Ω ergibt sich eine maximale Verlustleistung von 70 kW. Die erzeugte Wärme wird über einen Wasserkühlkreislauf (11 Atm, 27 l/min) abgeführt. Ueberschreitet die Wassertemperatur am Spulenausgang den Wert von 70°C , wird der Magnetstrom automatisch unterbrochen. Der Wasserkreislauf ist durch Druckwächter abgesichert.

Die geometrischen Abmessungen des Spulenpaares sind: Aussendurchmesser 55 cm, Innendurchmesser 25 cm, Breite der Einzelspule 15 cm. Der für Helmholtzgeometrie berechnete Spulenabstand beträgt 72 mm.

Die Stromversorgung erfolgt wahlweise durch ein Hewlett-Packard-Gerät (bis 20 A) oder durch ein SIN-Standardgerät der Firma Földi (bis 400 A). Dem Gleichstrom überlagert ist eine geringe Stromwelligkeit welche sich für bestimmte Experimente störend auswirkt. Feldfehler, hervorgerufen durch diese Stromwelligkeit können mit einem zusätzlichen kleinen Spulenpaar und einer Pickupspule im Innern des Helmholtzspulenpaares verkleinert werden.

Drei weitere Spulenpaare mit quadratischem Querschnitt ($100 \times 100 \text{ cm}^2$) deren Achsen senkrecht zueinander angeordnet sind, werden als Nullfeldkompensationsspulen verwendet. Kleine Magnetfelder (Erdfeld, Streufelder) bis 5 G können damit kompensiert werden.

Das Magnetfeld wird entweder mit einem Hallgerät, einem NMR-Gerät oder über den durch die Spulen fließenden Strom (Shunt-Widerstand) gemessen.

2.3.2. Detektoren

Die Detektoranordnung ist in Abb. 4 dargestellt. Für den Nachweis der Teilchen (Myonen und Positronen) werden Plastikszintillatoren verwendet. Durchquert ein geladenes Teilchen einen solchen Szintillator, wird Licht einer bestimmten Spektralverteilung mit Wellenlängen zwischen $3800 \text{ \AA}$ und $4800 \text{ \AA}$ emittiert. Die Abklingzeit des erzeugten Lichtpulses ist von der Grössenordnung einiger Nanosekunden. Für Detektoren die den Start bzw. den Stopp der Uhr definieren (Szintillatoren M , E_1 und P_1) wird wegen der rascheren Abklingzeit das Szintillatormaterial NE 111 (Nuclear Enterprise) verwendet. Für die anderen Detektoren wird das Material NE 102 gebraucht.

Als Photomultiplier werden AVP 56 und XP 2020 verwendet. Diese Röhren sind stark empfindlich auf Magnetfelder. Wegen dem starken Streufeld der eisenlosen Spulen, müssen die Photoröhren etwa 120 cm vom Spulenzentrum entfernt montiert werden. Der im Szintillator erzeugte Lichtpuls wird in einem Lichtleiter aus Plexiglas auf die Photoröhre übertragen. Die Lichtleiter sind gebündelt auf einem in der Spulennachse ausschwenkbaren Tisch gelagert. Das Target kann damit ausserhalb der Spulen gut zugänglich in die richtige Position gebracht und justiert werden.

2.3.3. Elektronik

In Abb. 5 ist ein vereinfachtes Schema der μ SR-Logik dargestellt. Bei einer Messung werden zwei Spektren mit den E- bzw. P-Detektoren aufgenommen. Mit Hilfe eines Routing-Systems werden die beiden Spektren in verschiedenen Bereichen des Speichers eines PDP-11 Rechners akkumuliert. Für die visuelle Darstellung der Spektren steht ein Bildschirm und eine Schreibmaschinenkonsole zur Verfügung. Mit einem Computerprogramm können in verschiedenen Zeitbereichen der beiden Spektren Fouriertransformationen gemacht werden. Am Ende jeder Messung werden die zwei Zeitspektren mit zusätzlichen Informationen auf ein Magnetband geschrieben. Dieses wird auf der Computeranlage des ETH-Rechenzentrums in Zürich ausgewertet.

Die Logik ist nach dem üblichen Slow-fast-Prinzip aufgebaut und hat grundsätzlich fünf Aufgaben zu erfüllen:

1. Nachweis eines im Target gestoppten Myons und Start einer Uhr.
2. Das zu diesem Myon gehörige Zerfallspositron muss registriert und die Uhr gestoppt werden.
3. Ein Routing-System muss die Zuordnung dieses Positronereignisses zu einem der beiden Zeitspektren machen.
4. Unkorrelierte Ereignisse müssen durch die Logik verworfen werden.
5. Die Zeit zwischen Start und Stopp der Uhr muss für die Verarbeitung im Computer digitalisiert werden.

Für die weitere Beschreibung der Logik werden einige Abkürzungen, welche in Abb. 5 verwendet werden, definiert.

$INC = ((B_0 + B_1) \cdot M_1 \cdot M_2)$	einfallendes Myon
$IST = (INC \cdot E_1 \cdot E_2 \cdot P_1 \cdot P_2)$	einfallendes und gestopptes Myon
$EF = (\bar{B}_0 \cdot \bar{B}_1 \cdot \bar{M}_1 \cdot \bar{M}_2 \cdot \bar{P}_1 \cdot \bar{P}_2 \cdot E_1 \cdot E_2)$	In der Strahlachse (vorwärts) emittiertes Positron
$EP = (\bar{B}_0 \cdot \bar{B}_1 \cdot \bar{M}_1 \cdot \bar{M}_2 \cdot \bar{E}_1 \cdot \bar{E}_2 \cdot P_1 \cdot P_2)$	Senkrecht zur Strahlachse emittiertes Positron

$ER = (\bar{B}_0 \cdot \bar{B}_1 \cdot M_1 \cdot M_2 \cdot \bar{E}_1 \cdot \bar{E}_2 \cdot \bar{P}_1 \cdot \bar{P}_2)$	entgegen der Strahlachse emittiertes Positron
ES	einzelnes nicht koinzidentes Positronereignis im Vorwärts-, Rückwärts- oder senkrechten Teleskop
CF	Constant Fraction Diskriminator
TAC	Time to amplitude converter
ADC	Analog to digital converter
AC 500	Camac interface
EGS, EDG	Positrongates

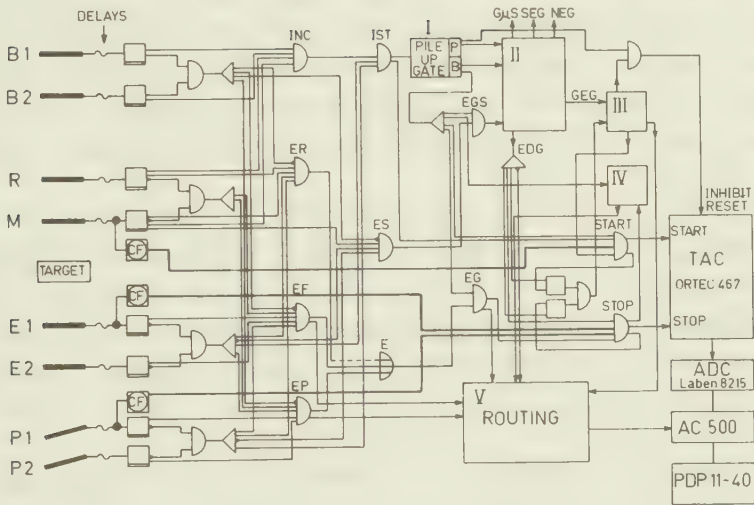


Abb. 5: Schema der verwendeten Elektronik. Die Logik der mit römischen Ziffern bezeichneten Boxen ist der Uebersichtlichkeit wegen nicht dargestellt worden.

Durch ein einfallendes (INC) und im Target gestopptes Myon (IST) wird durch das sogenannte Pile-up-Gate ein Rechteckpuls von 6 μ s Länge erzeugt. Gleichzeitig wird die Uhr (TAC) gestartet. Während der 6 μ s werden von der Logik Positronereignisse im Vorwärts (EF) und im senkrechten Teleskop (EP) zur Verarbeitung akzeptiert.

Bei hohen Raten ist die Wahrscheinlichkeit gross, dass innerhalb der $6 \mu\text{s}$ ein zweites Myon im Target gestoppt wird. In einem solchen Fall wird am Ausgang P des Pile-up-Gates ein Puls erzeugt, welcher die bereits gestartete Uhr wieder zurücksetzt. Dieses Ereignis muss deshalb verworfen werden, weil ein nachträglich festgestelltes Positron nicht mehr eindeutig dem ersten oder zweiten gestoppten Myon zugeordnet werden kann.

Wird innerhalb der $6 \mu\text{s}$ kein Zerfallspositron festgestellt (NEG) wird die gestartete Uhr ebenfalls zurückgesetzt. Nach jedem Positronereignis wird ein Gate geöffnet. Wird während dieser Zeit ein zweites Positronereignis (SEG) festgestellt, muss die Uhr ebenfalls zurückgesetzt werden. Andernfalls erfolgt ein Stopp der Uhr. Die so gemessene individuelle Lebensdauer eines Myons wird digitalisiert und über ein Interface im Computer gespeichert. Für die Daten steht zur Zeit ein Speicherbereich von 8 K zur Verfügung.

Der Rechner braucht für die Verarbeitung eines Ereignisses eine gewisse Zeit. Die Logik im Block III verhindert, dass während dieser Zeit weitere Ereignisse verarbeitet werden müssen. Dies führt zu einer geringen Totzeit, welche durch Verwendung eines Zwischenspeichers verkleinert werden könnte.

Die Logik im Block IV dient dazu, den zeitlichen Messbereich welcher im Rechner abgespeichert werden soll, variabel einstellen zu können ohne dass an der übrigen Logik etwas verändert werden muss. Von dieser Möglichkeit wird dann Gebrauch gemacht, wenn schnell relaxierende Präzessionssignale beobachtet werden sollen oder wenn eine grössere Zeitauflösung bei gleichbleibendem Speicherplatz benötigt wird.

Die Logik kann mit simulierten Myon- und Positronereignissen vor jeder Messperiode überprüft werden.

2.3.4. Eichung der Zeitskala, Zeitauflösung

Zur Bestimmung der Zeitauflösung können zwei Methoden verwendet werden.

1. Im Target nicht gestoppte Myonen erzeugen prompte Ereignisse. Theoretisch ergeben sie im Zeitspektrum eine scharfe Linie (Straight through peak). Dieser wird durch Schwankungen in der Elektronik sowie durch verschiedene Laufzeiten der Lichtpulse im Szintillator und im Lichtleiter verbreitert. Ein Mass für die Zeitauflösung ist die Breite des prompten Peaks auf halber Höhe. Diese beträgt etwa 0,9 ns. Die kleinste noch nachweisbare Periode T beträgt somit 1,8 ns. Die höchste mit dieser Apparatur noch auflösbare Frequenz beträgt etwa 550 MHz. Dies bedeutet, dass in Ferromagneten innere Magnetfelder bis ca. 40 kG noch nachgewiesen werden können.
2. Das mit dem Helmholtzspulenpaar maximal erreichbare Magnetfeld beträgt 6 kG. Dieses Feld ist zu klein um die Auflösung über die Myonpräzession zu bestimmen. In einigen wenigen Substanzen wird Myonium^{7,8}, ein wasserstoffähnliches Atom gebildet. Bei gleichem externen Magnetfeld ist die Myoniumpräzessionsfrequenz rund einhundert mal grösser als die Myonpräzessionsfrequenz. Die Zeitauflösung der Apparatur lässt sich damit auf einfache Weise mit kleinen Feldern (ca. 400G) über die höchste noch nachgewiesene Myoniumfrequenz bestimmen. Mit $B_{\text{ext}} = 400 \text{ G}$ konnte die bei 545 MHz erwartete Frequenz in Quarz noch nachgewiesen werden.

Das Verhalten eines Myoniumatoms in einem externen Magnetfeld ist im Anhang A beschrieben. Charakteristisch ist das Auftreten von zwei Linien im Fourierspektrum. Abb. 6 zeigt eine Messung in Quarz bei Zimmertemperatur in einem externen Magnetfeld von 101 G. Der Mittelwert der beiden Frequenzen beträgt etwa 142 MHz. Die Präzessionsfrequenz des freien Myons wäre in diesem Feld nur 1,36 MHz.

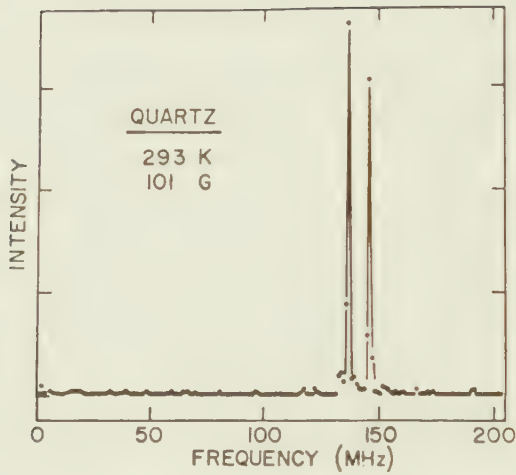


Abb. 6: Myonium in Quarz

2.3.5. Moderator

Der Myonimpuls beträgt im SIN normalerweise $p_\mu = 115 \text{ MeV/c}$. Mit diesem Impuls beträgt die mittlere Reichweite in Kohlenstoff etwa 10 cm (15 g/cm^2). Die verwendeten Targets haben Dicken von einigen g/cm^2 . Deshalb muss der Myonimpuls durch einen Moderator herabgesetzt werden. Die zu frühe Herabsetzung des Impulses hat den Nachteil, dass das Magnetfeld der Helmholtzspule die Myonbahn stärker beeinflusst. Ein Myon mit einem Impuls von 10 MeV/c in einem Magnetfeld von 5000 G durchläuft einen Kreis mit einem Krümmungsradius von 6.7 cm (Spulennendurchmesser: 12 cm). Damit der Strahl nicht zu stark vom Target

im Zentrum der Spule weggelenkt wird, erfolgt die Herabsetzung des Impulses in folgenden zwei Stufen:

1. Zwischen den Helmholtzspulen (Abb. 4) ist ein Mechanismus eingebaut, mit welchem die Moderatorstärke kontinuierlich zwischen null und 6 cm Wasser variiert werden kann. Dieser kann von der Elektronikbaracke aus fernbedient werden. Damit ist es möglich, für jedes Target die Stopprate durch Variieren der Moderatorstärke zu optimieren.
2. In den Kollimatoren unmittelbar vor der Target werden zusätzliche Moderator aus Polyäthylen eingebaut. Damit ist gewährleistet, dass der Einfluss des Magnetfeldes auf die Myonbahn stark reduziert wird.

2.3.6. Kollimatoren

Das Zentrum des Strahlflecks wird durch Kollimatoren unterschiedlicher Grösse ausgeblendet. Die Blendendurchmesser betragen 2 bis 4 cm. Der letzte Kollimator vor der Target ist mit auswechselbaren Einsätzen, welche an die Targetgrösse anpassbar sind, versehen. Die Durchmesser dieser Einsätze betragen 0.5 bis 2 cm. Die Kollimatoren bestehen aus Blei oder Kupfer. Wie oben erwähnt, kann in die Blendenöffnung zusätzliches Moderator material aus Polyäthylen gebracht werden.

2.3.7. Kryostat

Die Messungen unterhalb Zimmertemperatur wurden anfangs in einem Heliumverdampferkryostaten aus Stahl und später in einem an der ETHZ gebauten Heliumglaskryostaten durchgeführt. Eine schematische Darstellung des Kryostaten zeigt Abb. 7. Er besteht aus zwei konzentrischen Glasröhren. Die innere bildet den eigentlichen Targetraum. Zwischen den beiden Glasröhren ist ein Isolationsvakuum vorhanden. Das als Kühl-

mittel verwendete Heliumgas wird durch eine Heizung unmittelbar vor dem Targetraum auf die gewünschte Temperatur aufgeheizt. Als Temperatursensoren werden zwei Kupfer-Konstantan Thermoelemente und für Temperaturen unterhalb 20 K ein Kohlewiderstand verwendet. Als Referenztemperatur wird diejenige von flüssigem Stickstoff verwendet. Die Temperaturstabilität ist besser als 0.5 K.

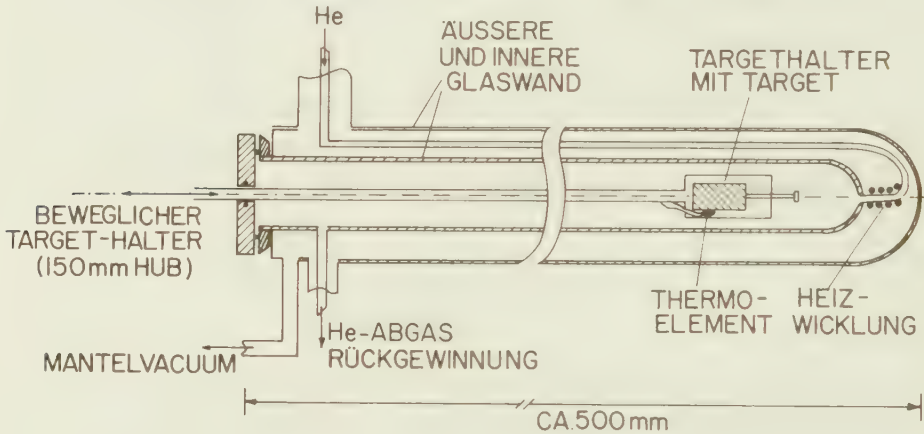


Abb. 7: He-Glaskryostat

2.3.8. Ofen

Für die Messungen oberhalb Zimmertemperatur wurde der in Abb. 8 schematisch dargestellte Ofen verwendet. Die Probe befindet sich im Vakuum. Zwischen der wassergekühlten Aussenwandung und dem eigentlichen Targetraum sind zwei Strahlenschilder eingebaut. Der Targetraum besteht aus Stumatit. Sein Innendurchmesser ist 30 mm. In diesem keramikartigen Material sind zwei unabhängige Heizwicklungen eingebaut. Sie wurden so konstruiert, dass kein resultierendes Magnetfeld im Targetraum entsteht. Die Regelung erfolgt durch einen einfachen EIN/AUS-Regelkreis. Als Temperatursensoren werden zwei Chromel-Alumel-Mantelthermoele-

mente verwendet. Die höchste mit dem Ofen erreichte Temperatur war 1200°C . Durch Anpassung der Heiz- an die Verlustleistung kann eine Temperaturstabilität, die besser als 1 K ist, erreicht werden. Die Ein- und Austrittsfenster des Ofens sind aus 0.1 mm dicken Cu-Folien gefertigt.

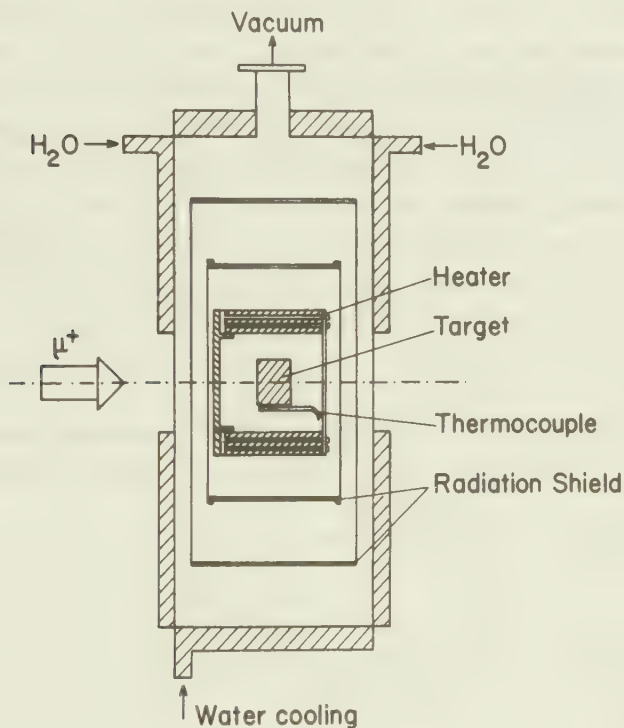


Abb. 8: Schematische Darstellung des Ofens

III. EXPERIMENTE

3.1. Kobalt

An einem Kobalteinkristall wurden drei Arten von Messungen durchgeführt: 1. Die Myonpräzessionsfrequenz wurde im Nullfeld als Funktion der Temperatur untersucht. 2. Bei Zimmertemperatur und bei 875 K wurde die Feldabhängigkeit des lokalen Feldes B_μ am Myonort für verschiedene Orientierungen des Kristalls bezüglich der Richtung des äusseren Magnetfeldes gemessen. 3. Bei drei Temperaturen (293 K, 673 K und 875 K) wurde das Vorzeichen von B_μ bestimmt. Zusätzlich wurde bei Zimmertemperatur in einer polykristallinen Probe die Abhängigkeit um B_μ von einem extern angelegten Feld untersucht. Für die Nullfeldmessungen wurde ein ellipsoidförmiger Einkristall von 8 mm Durchmesser und 12 mm Länge verwendet. Die Experimente zur Untersuchung der Feldabhängigkeit von B_μ wurden in einer Kugel mit einem Durchmesser von 8 mm gemacht.

Abb. 9 zeigt ein typisches Zeitspektrum eines Kobalteinkristalls, gemessen bei einer Temperatur von 4 K ohne extern angelegtes Magnetfeld.

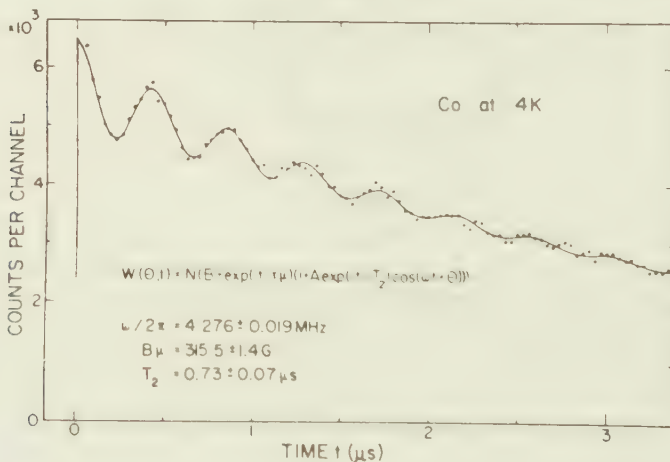


Abb. 9: μ SR-Zeitspektrum eines Kobalteinkristalls bei 4 K ohne extern angelegtes Magnetfeld.

Dem exponentiellen Zerfall überlagert erkennt man die Oszillationen der Positronenzählrate im Vorwärtsteleskop. Der Frequenz $\nu_{\mu} = 4.28$ MHz entspricht ein lokales Magnetfeld von $B_{\mu} = 316$ G. Die Amplitude ist gedämpft und nimmt nach $0.72 \mu\text{s}$ auf den e -ten Teil der Anfangsamplitude ab.

Kobalt kristallisiert bei Zimmertemperatur in der hexagonal dichtesten Kugelpackung (Abb. 10). Die in Betracht gezogenen Aufenthaltsorte für das Myon sind durch offene Kreise und die Gitterplätze durch Punkte eingezeichnet. Die lokale Symmetrie der Zwischengitterplätze ist durch die stark ausgezogenen Linien hervorgehoben. In der oberen Hälfte ist der Zwischengitterplatz mit tetraedrischer Symmetrie, in der unteren Hälfte derjenige mit oktaedrischer Symmetrie eingezeichnet.

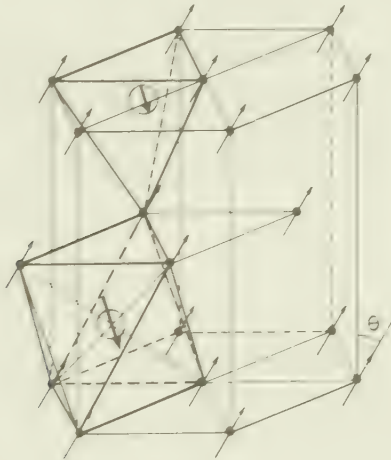


Abb. 10: Einheitszelle der hcp-Struktur.

Eingezeichnet sind der tetraedrische (oben) und der oktaedrische Zwischengitterplatz (unten). Die Pfeile an diesen Plätzen geben Richtung und relative Stärke des Dipolfeldes an. Die an den Gitterplätzen lokalisierten magnetischen Momente bilden mit der hexagonalen c -Achse einen Winkel θ welcher von der Temperatur abhängig ist. Unterhalb 500 K ist $\theta = 0^\circ$.

An den Gitterplätzen der Kobaltionen sind die ausgerichteten lokalisierten magnetischen Momente der d-Elektronen angedeutet. Der Winkel θ zwischen ihrer Richtung und der hexagonalen c-Achse ist eine Funktion der Temperatur⁹. Diese Momente erzeugen an den Zwischengitterplätzen ein Dipolfeld (siehe 3.1.1.). Die Richtung sowie die relative Stärke der Dipolfelder an den beiden Zwischengitterplätzen ist angedeutet. Die Gitterparameter a und c sind von der Temperatur abhängig. Diese Temperaturabhängigkeit wurde zwischen 96 K und 300 K röntgenographisch gemessen¹⁰. Für Temperaturen unterhalb 96 K bzw. oberhalb 300 K wurden sie aus den vorhandenen Messungen durch Extrapolation bestimmt. Die dafür verwendeten Näherungsformeln sind:

$$\begin{aligned}
 (6) \quad & a(T) = [2.5015 + 0.54457(-7)T^2] \text{ \AA} & T < 200 \text{ K} \\
 & c(T) = [4.0585 + 0.15045(-6)T^2] \text{ \AA} \\
 & a(T) = [2.5008 + 0.80957(-5)T + 0.34268(-7)T^2] \text{ \AA} & T > 200 \text{ K} \\
 & c(T) = [4.0557 + 0.31388(-5)T + 0.72486(-7)T^2] \text{ \AA}
 \end{aligned}$$

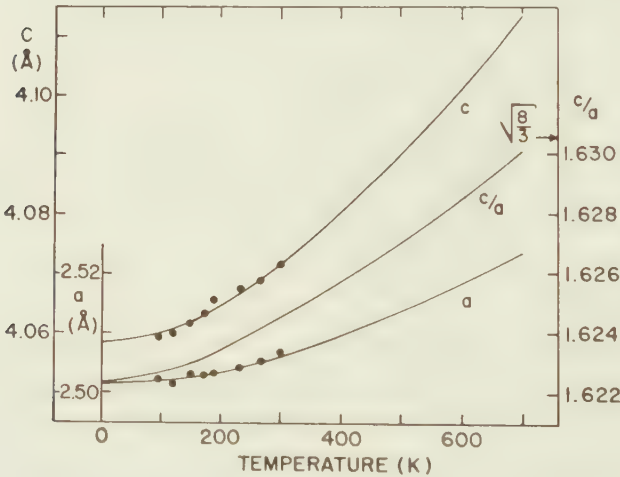


Abb. 11: Temperaturabhängigkeit der Gitterparameter a und c von Kobalt. Die experimentell bestimmten Werte¹⁰ wurden zu tieferen bzw. höheren Temperaturen extrapoliert.

Die Temperaturabhängigkeit der Gitterparameter a und c sowie das Verhältnis c/a sind in Abb. 11 dargestellt.

Bei $T = 690 \text{ K}$ erfolgt eine Phasenumwandlung von der hcp- in die kubisch flächenzentrierte (fcc)-Struktur. Die Gitterkonstante a ist bei $T = 690 \text{ K}$: $a = 3.552 \text{ \AA}$. Für die Temperaturabhängigkeit von a oberhalb 793 K wurden die Werte von Kohlhaas et al.¹¹ verwendet.

Kobalt gehört wie Eisen und Nickel zu den klassischen 3d-Übergangsmetallen. Bei Zimmertemperatur ist die hexagonale c -Achse die leichte Richtung der Magnetisierung. Ohne extern angelegtes Magnetfeld existieren nur Domänen parallel oder antiparallel zur c -Achse. Im Temperaturbereich $500 < T < 600 \text{ K}$ dreht die Richtung der leichten Magnetisierung aus der Richtung der hexagonalen c -Achse in die dazu senkrechte basale Ebene. Verantwortlich für eine solche Temperaturabhängigkeit der Magnetisierungsrichtung ist die Anisotropieenergie E_A , welche die Wechselwirkung zwischen dem anisotropen Kristallgitter und der Magnetisierung beschreibt. Unter Vernachlässigung der höheren Entwicklungsglieder wird die Energiedichte der Kristallenergie für hcp-Kristalle folgendermassen geschrieben:

$$(7) \quad E_A = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta$$

K_1 und K_2 sind die von der Temperatur abhängigen Anisotropiekonstanten^{12,13}. θ ist der Winkel zwischen der hexagonalen c -Achse und der leichten Richtung der Magnetisierung. Der eingenommene Zustand muss ein Zustand minimaler Energie sein. Durch Nullsetzen der Ableitung von Gl. (7) nach dem Winkel θ lassen sich drei mögliche Lösungen für diesen Winkel θ angeben:

$$(8) \quad \sin \theta = 0, \quad \sin^2 \theta = -\frac{K_1}{2 K_2}, \quad \cos \theta = 0$$

Unterhalb $T = 514 \text{ K}$ sind beide Anisotropiekonstanten positiv¹⁴. Während K_2 auch für $T > 514 \text{ K}$ positiv ist, wechselt K_1 bei dieser Temperatur

das Vorzeichen. Für positive Werte von K_1 und K_2 ergibt die zweite Lösung von (8) keine reellen Werte für den Winkel θ . Neutronenstreuexperimente⁹ haben ergeben, dass für $T < 514$ K der Winkel $\theta = 0$ ist. Für diesen Temperaturbereich hat somit die erste Lösung in (8) Gültigkeit. Bei $T = 600$ K wird $K_1 = -2K_2$ und damit $\sin^2 \theta = 1$. Im Temperaturbereich $514 < T < 600$ K stimmen die mit Neutronstreuexperimenten bestimmten Winkel θ gut mit den Werten, wie sie aus der zweiten Lösung (8) durch Einsetzen der entsprechenden Anisotropiekonstanten erhalten werden, überein. Für Temperaturen oberhalb 600 K ist in der hcp-Phase $\theta = 90^\circ$ (3. Lösung in (8)).

Für die Berechnung des im folgenden Abschnitt beschriebenen lokalen Magnetfeldes B_μ am Myonort muss die Temperaturabhängigkeit sowohl des lokalisierten magnetischen Moments $\vec{\mu}$ als auch der Sättigungsmagnetisierung $M(T) = M_0 (\epsilon(T)/\epsilon(0)) (\varrho(T)/\varrho(0))$ bekannt sein. M_0 ist die Magnetisierung bei 0 K, ϵ die Sättigungsmagnetisierungen pro Gramm und ϱ die Dichte bei der Temperatur T bzw. $T = 0$ K. Die Dichte als Funktion der Temperatur wurde aus der Temperaturabhängigkeit der Gitterkonstanten (6) berechnet. Die Magnetisierung pro Gramm wurde von Sucksmith und Meyers¹⁵ und Crangle¹⁶ entnommen. M_0 ist für die hcp-Struktur 162.5 emu/g (1466.11 G) und für die fcc-Struktur 166.1 emu/g (1414.8 G). Die aus diesen Größen abgeleiteten lokalisierten magnetischen Momente sind $|\vec{\mu}| = 1.715 \mu_B (M(T)/M(0))$ für die hcp-Phase und $|\vec{\mu}| = 1.751 \mu_B (M(T)/M(0))$ für die fcc-Phase.

3.1.1. Das Magnetfeld am Myonort

In einem ferromagnetischen Metall setzt sich das lokale am Myonort gemessene Feld aus folgenden Beiträgen zusammen:

$$(9) \quad \vec{B}_\mu(\vec{R}_\mu) = \vec{B}_{\text{ext}} + \vec{B}_{\text{dip}}(\vec{R}_\mu) + \vec{B}_{\text{hf}}(\vec{R}_\mu)$$

$\vec{B}_{\text{ext}}$ ist das extern angelegte Magnetfeld, $\vec{B}_{\text{dip}}$ das Dipolfeld, welches am Myonort durch die lokalisierten magnetischen Momente der Gitterionen erzeugt wird, und B_{hf} ist das durch die polarisierten Leitungselektronen erzeugte Hyperfeinfeld. Letzteres lässt sich folgendermassen schreiben (i-te Komponente):

$$(10) \quad B_{\text{hf},i} = \int d^3r D_{ij}(\vec{r}-\vec{R}_\mu) M_j(\vec{r}) \quad (i, j = 1, 2, 3)$$

$\vec{M}(\vec{r})$ ist die durch die polarisierten Leitungselektronen erzeugte Magnetisierung. $D_{ij}(\vec{x})$ mit $\vec{x} = \vec{r} - \vec{R}_\mu$ ist der Dipoltensor, welcher durch folgenden Ausdruck gegeben ist:

$$(11) \quad D_{ij}(\vec{x}) = (\nabla_i \nabla_j - \frac{1}{3} \delta_{ij} \Delta) \frac{1}{x} - \frac{2}{3} \delta_{ij} \Delta \frac{1}{x} \quad (i, j = 1, 2, 3)$$

Unter der Annahme, dass die Leitungselektronenverteilung um das Myon sphärisch symmetrisch ist, muss in Gl. (11) für $\vec{r} = \vec{R}_\mu$ nur der zweite Term berücksichtigt werden. Durch Integration von Gl. (10) erhält man somit für die i-te Komponente des Hyperfeinfeldes am Myonort folgenden Ausdruck:

$$(12) \quad B_{\text{hf},i}(\vec{R}_\mu) = \frac{8\pi}{3} M_i(\vec{R}_\mu) \quad (i = 1, 2, 3)$$

Das Dipolfeld aller an den Gitterplätzen $\vec{m}$ lokalisierten magnetischen Momente $\vec{\mu}(\vec{m})$ lässt sich analog zu Gl. (10) folgendermassen schreiben:

$$(13) \quad B_{\text{dip},i}(\vec{R}_\mu) = \sum_{\vec{m}} D_{ij}(\vec{m}-\vec{R}_\mu) \mu_j(\vec{m}) \quad (i, j = 1, 2, 3)$$

Die Summe über ein unendliches Gitter ist für ferromagnetische Substanzen nur bedingt konvergent. Gewöhnlich geht man bei der Berechnung der Summe in Gl. (13) so vor, dass vorerst die Summe über eine Kugel (Lorentzkugel) um $\vec{R}_\mu$ ausgeführt wird. Dies führt zu einem Beitrag $B'_{\text{dip}}(\vec{R}_\mu)$, welcher von der Gitterstruktur abhängig ist. Diese Summe kann mit der Ewald-Methode¹⁷ in eine rasch konvergente Reihe transformiert

werden. Der Rest der Summe über die Gitterplätze im Kristall wird durch ein Integral, dessen Wert unabhängig von $\vec{R}_\mu$ ist, ersetzt. Dies ergibt das Lorentzfeld $\vec{B}_L$ und sofern ein äusseres Feld angelegt ist, das von der Probenform abhängige Demagnetisierungsfeld $\vec{B}_{\text{dem}}$. Wie die Summation in Gl. (13) teilweise durch Integrationen ersetzt wird, veranschaulicht die Abb. 12.

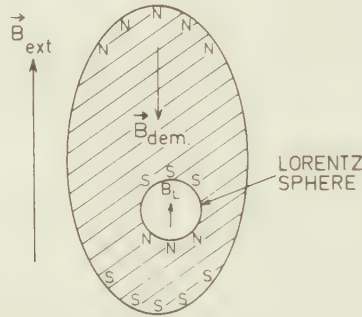


Abb. 12: Zur Definition des lokalen Feldes $\vec{B}_\mu$.

$\vec{B}_{\text{ext}}$ ist parallel zu einer Achse des Probenellipsoids orientiert. $\vec{B}_{\text{dem}}$ ist das von der Probenform abhängige Demagnetisierungsfeld. $\vec{B}_L$ ist das Lorentzfeld. N und S sind Nord- bzw. Südpole.

Ist die Probe gesättigt, kompensieren sich im Innern der Probe alle Magnetpole. N und S sind die an den beiden Probenenden übrig bleibenden Nord- bzw. Südpole. Diese erzeugen das dem externen Feld entgegengesetzte entmagnetisierende Feld. Die Nord- und Südpole an der herausgeschnitten zu denkenden Lorentzkugel erzeugen das Lorentzfeld, welches parallel zum äusseren Magnetfeld orientiert ist. Ohne extern angelegtes Magnetfeld und damit ohne eine makroskopische Magnetisierung heben sich die Beiträge von den verschiedenen orientierten Domänen gegenseitig auf. In diesem Fall bleibt lediglich das Lorentzfeld $\vec{B}_L = 4\pi/3 \vec{M}_s$ übrig. $\vec{M}_s$ ist dann die Magnetisierung in einer einzelnen Domäne. In der folgenden Gl. (14) sind nochmals alle Beiträge zum lokalen Magnetfeld am Myonort zusammengefasst:

$$(14) \quad \vec{B}_{\mu}(\vec{R}_{\mu}) = \vec{B}_{\text{ext}} + \vec{B}_{\text{dem}} + \vec{B}_L + \vec{B}'_{\text{dip}}(\vec{R}_{\mu}) + \vec{B}_{\text{hf}}(\vec{R}_{\mu})$$

Bei bekannter Gitterstruktur und bekanntem am Gitterplatz $\vec{m}$ lokalisierten magnetischen Moment $\vec{\mu}(\vec{m})$ lässt sich $\vec{B}'_{\text{dip}}(\vec{R}_{\mu})$ an verschiedenen Zwischengitterplätzen berechnen. Ohne externes Magnetfeld kann dann aus berechnetem Dipolfeld und gemessenem lokalen Feld $\vec{B}_{\mu}$ das Hyperfeinfeld $\vec{B}_{\text{hf}}$ berechnet werden.

3.1.2. Messungen

a) Messungen ohne externes Magnetfeld

In einem Kobalteinkristall wurde ohne externes Magnetfeld die Temperaturabhängigkeit der Parameter A, P(t) und ν_{μ} gemessen. Mit einer schnellen Fouriertransformation wurde von allen gemessenen Zeitspektren das Frequenzspektrum berechnet. Gleichung (5) wurde mit der Methode der kleinsten Quadrate an die gemessenen Zeitspektren angepasst. Dazu wurde das Rechenprogramm Minuit¹⁸ benutzt. Die angepassten Parameter sind die Normierung N, der konstante Untergrund B, die Asymmetrie A, die Relaxationszeit T_2 , wobei für P(t) eine exponentielle Dämpfungsfunktion mit $P(t) = \exp(-t/T_2)$ eingesetzt wurde, sowie die Frequenz ν_{μ} und die Phase θ .

Die Temperaturabhängigkeit der physikalisch interessanten Parameter sind in den drei folgenden Abbildungen dargestellt.

In Abb. 13 ist die Myonpräzessionsfrequenz ν_{μ} bzw. das daraus abgeleitete lokale Magnetfeld B_{μ} als Funktion der Temperatur dargestellt. Zwischen 450 K und 550 K wurde kein Signal beobachtet. Bei $T = 690$ K macht die Frequenz einen Sprung von 5 MHz auf fast den doppelten Wert. Bei dieser Temperatur erfolgt ein Phasenübergang von der hcp- in die fcc-Struktur. Zwischen 700 K und 1100 K ist die Präzessionsfrequenz praktisch unabhängig von der Temperatur. Oberhalb 1100 K konnte mit

dem Ofen nicht mehr gemessen werden. Die Fehler sind von der Grö-
ßenordnung der Punkte ausser wo sie speziell angegeben sind. Die ge-
strichelte Kurve verbindet lediglich die Messpunkte.

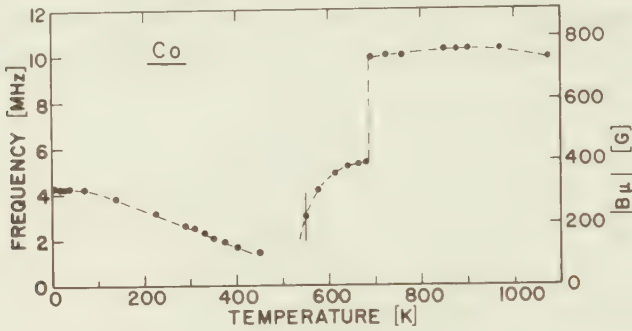


Abb. 13: Dargestellt ist die Temperaturabhängigkeit der Myonpräzes-
sionsfrequenz in Kobalt. Das daraus berechnete lokale Magnet-
feld B_μ ist auf der rechten Skala angegeben. Die gestrichelte
Linie verbindet lediglich die Messpunkte. Die Fehler sind von
der Grössenordnung der Punkte.

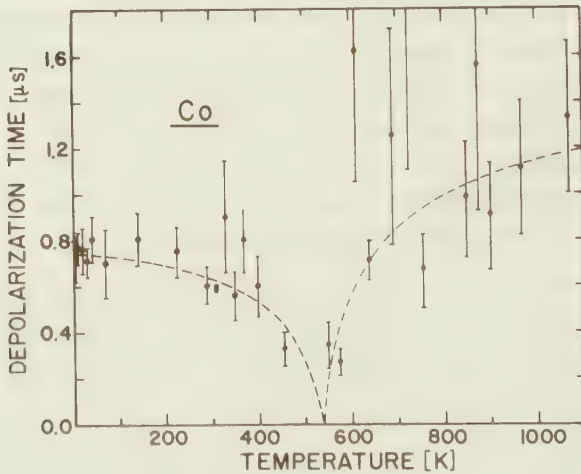


Abb. 14: Relaxationszeit T_2 als Funktion der Temperatur in Kobalt.

In Abb. 14 ist die Temperaturabhängigkeit der Relaxationszeit T_2 dargestellt. Bis 400 K ist T_2 praktisch konstant ($0.8 \mu\text{s}$). Im Temperaturbereich $450 < T < 600$ K hat T_2 ein deutliches Minimum. Oberhalb Zimmertemperatur sind die Fehler von T_2 gross. Ein Grund dafür ist die geringe Statistik der aufgenommenen Zeitspektren. Ein anderer ist der grosse, vom umgebenden Ofenmaterial stammende Untergrund.

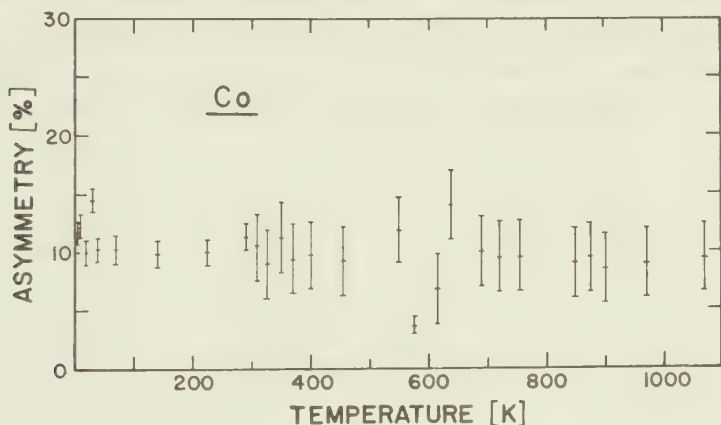


Abb. 15: Asymmetrie A als Funktion der Temperatur T in Kobalt. Die Werte oberhalb Zimmertemperatur sind auf den Wert von A bei $T = 289$ K normiert.

In Abb. 15 ist die Asymmetrie A als Funktion der Temperatur dargestellt. Der grosse vom Ofenmaterial verursachte Untergrund hat eine Verkleinerung der Asymmetrie zur Folge. Oberhalb Zimmertemperatur wurden deshalb die Werte von A an den Wert von A bei $T = 289$ K (ohne Ofen) angepasst. Es zeigt sich, dass A im wesentlichen unabhängig von der Temperatur ist.

b) Messungen mit externem Magnetfeld

Mit einer Einkristallkugel (Durchmesser 8 mm) und einer polykristallinen Probe wurden Experimente zur Untersuchung der Abhängigkeit von B_μ als Funktion eines extern angelegten Magnetfeldes durchgeführt. Bei Zimmertemperatur wurde die Feldabhängigkeit bei drei verschiedenen Orientierungen der hexagonalen c-Achse bezüglich der Richtung des externen Magnetfeldes untersucht ($\bar{\varphi} = 0^\circ, 45^\circ$ und 90°). Bei 875 K wurde ebenfalls die Feldabhängigkeit von B_μ in der fcc-Phase gemessen. Bei dieser Messung war die Kugel willkürlich bezüglich des externen Feldes orientiert. Das Ergebnis dieser Experimente ist in der Abb. 16 dargestellt.

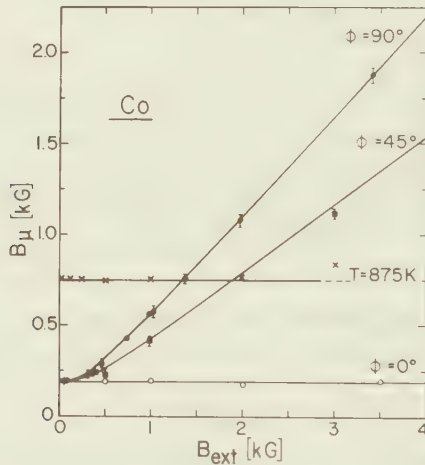


Abb. 16: Feldabhängigkeit von B_μ in der hcp-Phase ($T = 280$ K) und in der fcc-Phase ($T = 875$ K).

Bei Zimmertemperatur wurde die Feldabhängigkeit für drei verschiedene Orientierungen der hexagonalen c-Achse bezüglich der Richtung des extern angelegten Magnetfeldes untersucht. ($\bar{\varphi} = 0^\circ, 45^\circ$ und 90°)

B_μ ist in der hcp-Phase für $\bar{\varphi} = 0^\circ$ (c-Achse parallel zur Richtung des externen Magnetfeldes) und in der fcc-Phase ($T = 875$ K) unabhängig vom

externen Magnetfeld. Für $\bar{\Phi} = 45^\circ$ und 90° wird eine starke Feldabhängigkeit beobachtet. Die ausgezogenen Kurven für $\bar{\Phi} = 0^\circ$, 45° und 90° entsprechen dem erwarteten theoretischen Verhalten (siehe 3.1.4. b).

Die externe Feldabhängigkeit von B_μ in polykristallinem Material ist in der Abb. 17 dargestellt. Wegen der starken Zunahme der Relaxationsrate mit zunehmendem externen Magnetfeld konnte das Präzessionssignal nur bis $B_{\text{ext}} = 600$ G beobachtet werden. Die ausgezogene Kurve stellt die theoretische Abhängigkeit dar (siehe 3.1.4. b und Tabelle III).

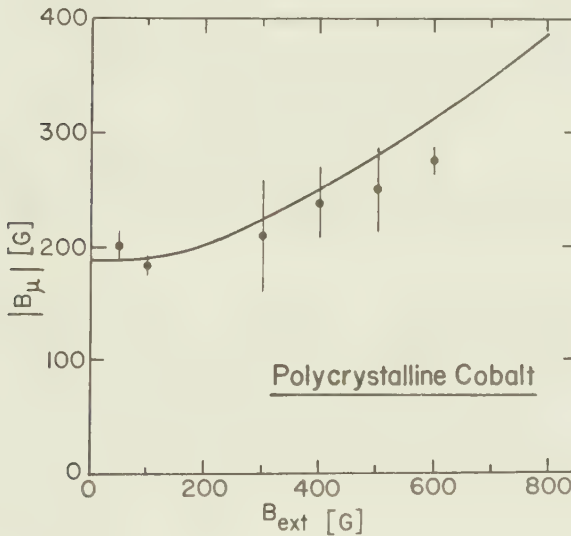


Abb. 17: Das lokale Feld B_μ als Funktion des externen Magnetfeldes in polykristallinem Kobalt.
Die eingezeichnete Kurve entspricht den berechneten Werten von B_μ aus Tabelle III.

3.1.3. Bestimmung des Vorzeichens von B_μ

Für die Interpretation der experimentellen Daten muss das Vorzeichen von B_μ in den drei charakteristischen Temperaturbereichen der Abb. 13 bekannt sein. Die Messungen zur Bestimmung dieses Vorzeichens wurden mit der Einkristallkugel bei $T = 293\text{ K}$, 673 K und 875 K durchgeführt. Die c -Achse des Kristalls wurde parallel zur Richtung des externen Magnetfeldes orientiert.

Das Vorzeichen von B_μ erhält man aus der Differenz der Anfangsphase θ des Präzessionssignals im Vorwärtsteleskop (F) und im senkrechten Teleskop (P) (siehe Abb. 4). Beträgt diese Phasendifferenz 90° bzw. 270° , präzessiert das Myon im Uhrzeigersinn bzw. im Gegenuhrzeigersinn. Um den positiven Drehsinn festzulegen, wurde in einer nichtmagnetischen Referenzprobe (Kupfer) die Phasendifferenz $\delta_{\text{ref}} = \theta_{\text{ref}}(\text{F}) - \theta_{\text{ref}}(\text{P})$ gemessen und mit der in Kobalt gemessenen Phasendifferenz $\delta_{\text{Co}} = \theta_{\text{Co}}(\text{F}) - \theta_{\text{Co}}(\text{P})$ verglichen. Der Quotient $r = \delta_{\text{Co}} / \delta_{\text{ref}}$ ist $+1$ wenn das lokale Feld B_μ in Kobalt gleich orientiert ist wie das extern angelegte Feld und -1 falls es antiparallel dazu orientiert ist.

In der unmagnetisierten Kobaltprobe sind gleich viele Domänen mit dem lokalen Feld B_μ parallel wie antiparallel zur c -Achse orientiert. Da damit gleich viele Myonen im Uhrzeigersinn wie entgegengesetzt dazu präzessieren, führt dies zu einer Auslöschung des Signals im senkrechten Teleskop. Die Probe muss deshalb mit einem parallel zur c -Achse angelegten Magnetfeld magnetisiert werden. Bei dieser Orientierung ($\vec{Q} = 0$) ist die Präzessionsfrequenz unabhängig vom extern angelegten Magnetfeld (Abb. 16). Um Fehler in der Bestimmung der Phasendifferenz zu vermeiden, wurde die Frequenz des Referenzsignals gleich gross wie diejenige des Kobaltsignals gewählt (ca. 2.6 MHz bei $T = 293\text{ K}$ und 5 MHz bei $T = 673\text{ K}$).

Die Ergebnisse dieser Messungen sind in Tabelle II zusammengefasst.

Tabelle II: Phasendifferenz zwischen Vorwärtsteleskop und senkrechtem Teleskop für Kobalt und Referenzprobe.

T	δ_{Co}	δ_{ref}	r
293	-0.63 ± 0.11	1.35 ± 0.06	-0.47 ± 0.08
673	0.61 ± 0.50	1.50 ± 0.04	0.41 ± 0.34
875	-1.59 ± 0.70	-1.72 ± 0.17	0.92 ± 0.42

Für $T = 293 \text{ K}$ ist das Vorzeichen von r negativ d.h. $B_{\mu} < 0$. Für die beiden andern Temperaturen wird ein positives Vorzeichen für r und damit ein positives lokales Magnetfeld B_{μ} erhalten. Die Abweichungen von r gegenüber dem erwarteten Wert ± 1 sind nicht verstanden. Zwei mögliche Ursachen können dafür verantwortlich sein:

1. Eine nicht optimale Orientierung der c-Achse des Kristalls bezüglich der Richtung des externen Feldes und
2. die stark unterschiedlichen externen Magnetfelder (4000 G für die Kobaltmessung bzw. 200 G für die Messung in der Referenzprobe).

Diese Ergebnisse deuten, zusammen mit der Tatsache, dass im Temperaturbereich um $T = 500 \text{ K}$ das Signal nicht beobachtet werden konnte (Nulldurchgang der Frequenz) darauf hin, dass B_{μ} bei $T = 293 \text{ K}$ negativ und bei $T = 673 \text{ K}$ bzw. $T = 875 \text{ K}$ positiv ist. Diese Annahme wird durch die Diskussion im folgenden Abschnitt weiter unterstützt.

3.1.4. Diskussion der Messergebnisse

a) Messungen im Nullfeld

Die Gl. (14), welche die verschiedenen Beiträge zum lokalen Magnetfeld B_{μ} am Myonort enthält, kann ohne äusseres Feld folgendermassen geschrieben werden

$$(15) \quad \vec{B}_\mu = \vec{B}_L + \vec{B}'_{\text{dip}}(\vec{R}_\mu) + \vec{B}_{\text{hf}}$$

Für eine unmagnetisierte Probe ist $\vec{B}_{\text{dem}} = 0$. Das Lorentzfeld $\vec{B}_L$ ist durch die Magnetisierung in einer Domäne definiert. Das Dipolfeld $\vec{B}'_{\text{dip}}(\vec{R}_\mu)$ kann berechnet werden, wenn der Aufenthaltsort des Myons bekannt ist. Dafür in Frage kommen die in der Abb. 10 diskutierten Zwischengitterplätze sowie möglicherweise der substitutionelle Gitterplatz. Das Hyperfeinfeld am Myonort kann dann aus den experimentellen Daten berechnet werden, wenn der Betrag und das Vorzeichen von B_μ bekannt sind. Um nur noch den Aufenthaltsort des Myons als freien Parameter zu haben, ist die Kenntnis des Vorzeichens von B_μ notwendig. Wie im vorangegangenen Abschnitt gezeigt wurde, ist B_μ für Temperaturen unterhalb des Spinrotationsgebietes negativ und für solche oberhalb positiv.

In der folgenden Abb. 18 ist das aus den μSR -Messdaten berechnete Hyperfeinfeld B_{hf} als Funktion der Temperatur dargestellt. In dieser Abbildung ist für die Berechnung des Dipolfeldes neben dem Aufenthaltsort des Myons (oktaedrischer und tetraedrischer Zwischengitterplatz sowie substitutioneller Platz) auch das Vorzeichen von B_μ in den drei untersuchten Temperaturgebieten als freier Parameter gewählt worden. Unter der Bedingung, dass sich das Hyperfeinfeld im Spinrotationsgebiet stetig ändert, bleiben von allen möglichen Kombinationen noch zwei zur weiteren Diskussion übrig. Es sind dies der oktaedrische Zwischengitterplatz mit der Vorzeichenkombination $(-+)$ von B_μ unterhalb bzw. oberhalb des Spinrotationsgebietes, sowie der tetraedrische Zwischengitterplatz mit der Vorzeichenkombination $(+-)$.

Das Hyperfeinfeld sollte wie die makroskopische Magnetisierung mit zunehmender Temperatur abnehmen. Da dies nur für den Oktaederplatz zutrifft, ist es gerechtfertigt, diesen Platz als Aufenthaltsort für das Myon anzunehmen. Durch die experimentelle Bestimmung des Vorzeichens von B_μ in allen drei Temperaturbereichen ist diese Hypothese weiter gestützt worden. In der fcc-Phase oberhalb $T = 690 \text{ K}$ ist das Dipolfeld an allen möglichen Zwischengitterplätzen null. Das Hyperfeinfeld ist dann direkt durch $\vec{B}_{\text{hf}} = \vec{B}_\mu - \vec{B}_L$ gegeben.

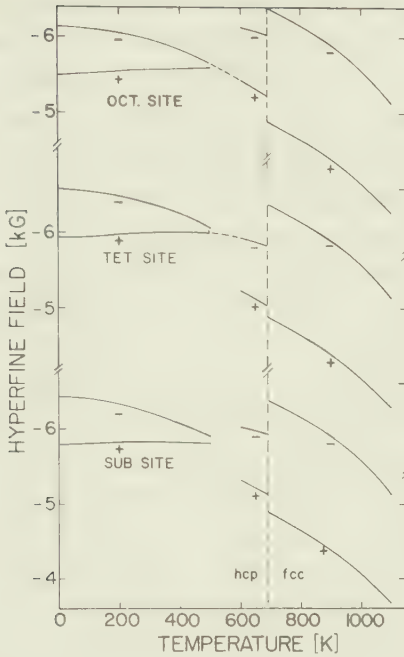


Abb. 18: Für verschiedene Aufenthaltsorte des Myons berechnete Temperaturabhängigkeit von B_{hf} . Alle möglichen Vorzeichenkombinationen von B_{μ} sind berücksichtigt. Unter der Annahme, dass sich B_{hf} im Spinrotationsgebiet stetig ändert und als Funktion der Temperatur wie die makroskopische Magnetisierung verläuft, kommt nur der oktaedrische Zwischengitterplatz als Aufenthaltsort für das Myon in Frage. Danach ist B_{μ} unterhalb 450 K negativ und oberhalb des Spinrotationsgebietes positiv.

In der Abb. 19 sind die verschiedenen Beiträge zum Hyperfeinfeld ($\vec{B}_{hf} = \vec{B}_{\mu} - \vec{B}_L - \vec{B}'_{dip}$) nochmals dargestellt. B_{hf} ist negativ und hat bei $T=0K$ einen Wert von -6.1 kG. Beim Phasenübergang von der hcp- in die fcc-Phase ist ein Sprung von 6% im Hyperfeinfeld zu beobachten. Die Diskontinuität im Lorentzfeld^{10, 19} erklärt unter Berücksichtigung einer Korrektur für die unterschiedlichen Dichten nur einen Anteil von etwa 1.8%.

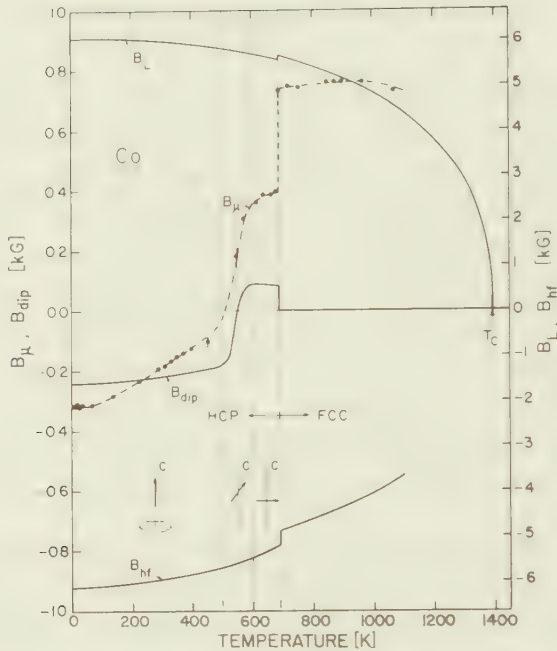


Abb. 19: Temperaturabhängigkeit des gemessenen lokalen Feldes B_μ und der verschiedenen Beiträge B_L , B'_{dip} und B_{Hf} zu diesem Feld in Kobalt. Das Dipolfeld B'_{dip} wurde für den Oktaederplatz berechnet. Das Vorzeichen der einzelnen Beiträge ist bezüglich der Magnetisierungsrichtung $\vec{M}$ definiert. Zwischen 500 K und 600 K ändert sich die leichte Richtung der Magnetisierung. Bei 690 K erfolgt ein Uebergang von der hcp- in die fcc-Phase.

Die Ursache für die restlichen 4.2% ist noch nicht verstanden. Zusätzlich zu diesem Sprung am Phasenübergang ändert sich das Hyperfeinfeld in der hcp-Phase stärker mit der Temperatur als die Sättigungsmagnetisierung. Messungen des Hyperfeinfeldes an Störstellen wie Ga, Be, As und Sn in Kobalt^{20,21,22} zeigen ebenfalls eine Temperaturabhängigkeit, welche vom Verlauf der makroskopischen Magnetisierung abweicht. Zwei mögliche Gründe für die beobachtete Abweichung sollen hier erwähnt werden: 1. Das Myon wie auch die Fremdatome stören in ihrer Umgebung

das ferromagnetische Wirtsgitter. Der so gebildete magnetische Komplex mit den nächsten Nachbarn kann ein anderes Temperaturverhalten zeigen als die makroskopische Magnetisierung²³. 2. Die Abschirmung des Myons durch Leitungselektronen führt zu einem Beitrag von $\vec{B}_{hf}(T)$, der nicht-linear mit der Magnetisierung $\vec{M}(T)$ zusammenhängt²⁴. Um über die wirkliche Ursache dieser Abweichung eine Aussage machen zu können, sind weitere Experimente notwendig. Insbesondere könnte die Untersuchung des Hyperfeinfeldes als Funktion eines äusseren Druckes weitere Anhaltspunkte dazu geben.

Neutronstreuexperimente liefern im Gegensatz zu Messungen des Hyperfeinfeldes an Fremdatomen eine Information über die Spindichtevertelung im gesamten Volumen des untersuchten Kristalls, eingeschlossen die für das positive Myon wichtigen Zwischengitterplätze. Experimentell wird der Formfaktor für die Spindichtevertelung im Impulsraum gemessen. Durch Fouriertransformation erhält man die Spindichtevertelung im Ortsraum. Die Ergebnisse solcher Messungen in Kobalt^{25,26} lassen sich kurz folgendermassen zusammenfassen: Um jeden Gitterpunkt existiert eine fast sphärische positive Magnetisierungsvertelung. In der Zwischengitterregion fällt diese Magnetisierung auf einen negativen konstanten Wert von $-0.021 \mu_B/\text{\AA}^3$ ab. Dies entspricht einer lokalen Magnetisierung von $M = -0.194 \text{ kG}$. Diese Resultate, welche in guter Uebereinstimmung mit theoretischen Ergebnissen aus Bandstrukturrechnungen sind²⁷, lassen sich mit den μSR -Daten vergleichen. Gleichung (12) gibt den Zusammenhang zwischen der interstitiellen Magnetisierung M und dem Hyperfeinfeld, wenn die Myonladung die elektronische Umgebung nicht stört. Mit dem oben angegebenen Wert für die ungestörte Spindichte bzw. dem daraus abgeleiteten Wert der lokalen Magnetisierung erhält man für das Hyperfeinfeld $B_{hf} = -1.62 \text{ kG}$. Der um einen Faktor 4.8 grössere Wert für B_{hf} aus den μSR -Messungen wird so erklärt, dass das Myon die lokale Ladungs- und Spindichte durch seine Anwesenheit ändert. Theoretische Berechnungen des Hyperfeinfeldes, sind nicht in der Lage, den in diesem Experiment gefundenen Faktor zu erklären^{28,29}. Alle Rechnungen gehen von einem homogen polarisierten Elektronengas der Dichte n_0 und

der Magnetisierung M_0 aus, wobei M_0 aus den Neutronstreuexperimenten übernommen wird. Jena²⁸ erhält im Rahmen seiner Theorie, in welcher das Hyperfeinfeld durch die Fermiwellenzahl und das magnetische Moment des Wirtsgitters gegeben ist, einen Wert von $B_{\text{hf}} = -2,5 \text{ kG}$. Neuere Rechnungen von Jena et al.³⁰ ergeben für die Spindichteerhöhung einen Faktor 9. Da das Myon die lokale Magnetisierung am Zwischengitterplatz aber wesentlich ändert, ist es nicht gerechtfertigt, in den Rechnungen von einer ungestörten Polarisation auszugehen. Die Elektronenwellenfunktionen sollten vielmehr sowohl im ungestörten Gitter als auch im gestörten Gitter bei Anwesenheit des Myons berechnet werden. Die aus den ungestörten Wellenfunktionen berechnete Spindichte kann mit der Magnetisierungsverteilung, welche aus Neutronstreuexperimenten erhalten wird, verglichen werden. Die durch das Myon gestörten Elektronenwellenfunktionen führen zu einer gestörten Spindichte bzw. Magnetisierung. Das aus μSR -Messungen bestimmte Hyperfeinfeld sollte deshalb mit Ergebnissen aus solchen Rechnungen verglichen werden. Da auch die d-Elektronenwellenfunktionen durch das Myon gestört werden, ist nicht ausgeschlossen, dass dadurch die magnetischen Eigenschaften der benachbarten Gitterionen beeinflusst werden. Eine mikroskopische Theorie welche alle diese Aspekte behandelt ist schwierig. Es ist deshalb verständlich, dass die Uebereinstimmung zwischen Experiment und Theorie im Moment noch nicht besonders gut ist.

b) Messungen mit externem Magnetfeld

Zuerst werden die Messungen an der Einkristallkugel und anschliessend diejenigen am polykristallinen Material diskutiert. Die Magnetfeldabhängigkeit von B_μ im Kobalteinkristall ist in der Abb. 16 dargestellt. In der fcc-Phase ($T \sim 875 \text{ K}$) ist das lokale Feld B_μ unterhalb der Sättigungsmagnetisierung ($B_s = 6032 \text{ M(T)}/\text{M(0)} \text{ [G]}$) unabhängig vom extern angelegten Magnetfeld. Dies ist in Uebereinstimmung mit den Messungen in Nickel welches ebenfalls eine kubisch flächenzentrierte Gitterstruktur besitzt (siehe Abschnitt 3.4.). Dieses Verhalten wird damit erklärt, dass das

Dipolfeld am Myonort wegen der Symmetrie des Platzes null ist. Die Beiträge von externem Feld B_{ext} und Entmagnetisierungsfeld B_{dem} in $\vec{B}_{\mu} = \vec{B}_{\text{ext}} + \vec{B}_{\text{dem}} + \vec{B}_L + \vec{B}_{\text{hf}}$ kompensieren sich unterhalb des Sättigungsfeldes. $\vec{B}_{\mu}$ ist in diesem Bereich nur durch das Hyperfeinfeld $\vec{B}_{\text{hf}}$ und das Lorentzfeld $\vec{B}_L$ bestimmt. Diese sind aber in erster Näherung unabhängig vom extern angelegten Magnetfeld.

Um das Verhalten von $\vec{B}_{\mu}$ als Funktion des Magnetfeldes in der hcp-Phase zu verstehen, wird der Ausdruck in Gl. (14) für das lokale Feld am Myonort etwas genauer untersucht. Ist ein externes Magnetfeld in einer beliebigen Richtung $\vec{Q}$ bezüglich der hexagonalen c-Achse angelegt, sind die beiden ersten Terme in (14) ungleich null. Sämtliche Beiträge zu B_{μ} sind implizit vom Winkel $\vec{Q}$ und dem Betrag des externen Magnetfeldes abhängig. Die folgende Abb. 20 veranschaulicht die Situation.

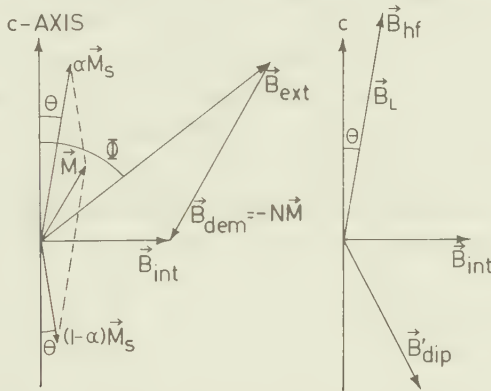


Abb. 20: Durch Anlegen eines externen Magnetfeldes werden die Domänen mit der Domänenmagnetisierung $\vec{M}_S$ um den Winkel θ aus der leichten Richtung der Magnetisierung (c-Achse des Kristalls) herausgedreht. Der Volumenanteil der Domänen ist α bzw. $(1-\alpha)$. $\vec{M}$ ist die makroskopische Magnetisierung. $\vec{B}_{\text{dem}}$ ist das Demagnetisierungsfeld. $N (= 4\pi/3$ für eine Kugel) ist der Entmagnetisierungsfaktor. $\vec{B}_{\text{hf}}$ und $\vec{B}_L$ sollen dieselbe Richtung wie die Domänenmagnetisierung haben. $\vec{B}'_{\text{dip}}$ ist das Dipolfeld der lokalisierten Momente in der Lorentzkugel.

Ohne externes Feld sind die Domänen parallel bzw. antiparallel zur hexagonalen c-Achse ausgerichtet. Wird unter dem Winkel $\tilde{\vartheta}$ zur c-Achse ein externes Magnetfeld angelegt, werden die Domänen um den Winkel θ aus der leichten Richtung der Magnetisierung herausgedreht. Der Volumenanteil der beiden Domänenarten ist α bzw. $(1-\alpha)$. Es wird angenommen, dass das Lorentzfeld und das Hyperfeinfeld in den beiden Domänenarten parallel zur entsprechenden Domänenmagnetisierung orientiert sind.

$\vec{B}_{\text{dem}} = -N\vec{M}$ ist das Entmagnetisierungsfeld. Für eine Kugel ist der Entmagnetisierungsfaktor $N=4\pi/3$. Die Komponenten von B_{μ} in x- (senkrecht zur c-Achse) und y-Richtung (parallel zur c-Achse) sind für die beiden Domänenarten 1 und 2:

$$(17) \quad \begin{aligned} B_{\mu}^x(1,2) &= B_{\text{ext}} \sin \tilde{\vartheta} - NM_s \sin \theta + \left(\frac{4\pi}{3} M_s + B_{\text{hf}}\right) \sin \theta + B_{\text{dip},x}(\theta) \\ B_{\mu}^y(1,2) &= B_{\text{ext}} \cos \tilde{\vartheta} - NM_s (2\alpha - 1) \cos \theta \pm \left(\frac{4\pi}{3} M_s + B_{\text{hf}}\right) \cos \theta \pm B_{\text{dip},y}(\theta) \end{aligned}$$

Sie können berechnet werden, wenn die beiden Größen α und θ als Funktion des Magnetfeldes bekannt sind. Die Feldabhängigkeit von α und θ ist bestimmt durch eine Wechselwirkung von drei verschiedenen Beiträgen zur gesamten magnetischen Energie E_M des Systems, welche durch folgenden Ausdruck gegeben ist:

$$(18) \quad E_M = E_A + E_Z + E_{DM}$$

E_A ist die Anisotropieenergie (Gl. (7), $E_Z = -\vec{M} \cdot \vec{B}_{\text{ext}}$ die magnetische Energie der Magnetisierung $\vec{M}$ im externen Feld und $E_{DM} = (1/2)NM^2$ die Entmagnetisierungsenergie. Unter der Berücksichtigung beider Domänenarten erhält man für Gl. (18) folgenden Ausdruck:

$$\begin{aligned}
 E_M = & \alpha(K_1 \sin^2 \theta_1 + K_2 \sin^4 \theta_1) + (1-\alpha)(K_1 \sin^2 \theta_2 + K_2 \sin^4 \theta_2) \\
 & - \alpha |\vec{B}_{\text{ext}}| |\vec{M}_S| \cos(\bar{\vartheta} - \theta_1) + (1-\alpha) |\vec{B}_{\text{ext}}| |\vec{M}_S| \cos(\bar{\vartheta} + \theta_2) \\
 (19) \quad & + \frac{1}{2} \left(\frac{4\pi}{3} \right) [(\alpha |\vec{M}_S| \sin \theta_1 + (1-\alpha) |\vec{M}_S| \sin \theta_2)^2 \\
 & + (\alpha |\vec{M}_S| \cos \theta_1 - (1-\alpha) |\vec{M}_S| \cos \theta_2)^2]
 \end{aligned}$$

Im Ausdruck für die Gesamtenergie (19) sind die Winkel θ_1 und θ_2 der beiden Domänenrichtungen gegenüber der c-Achse des Kristalls als freie Parameter gewählt.

Mit gegebenem externen Magnetfeld, Domänenmagnetisierung und Anisotropiekonstanten kann der Ausdruck (19) minimal gemacht werden. Für das Minimum der Funktion erhält man θ_1 , θ_2 und α . Für die beiden Winkel θ_1 und θ_2 , welche im Minimum immer gleich gross sind, wird der Winkel θ eingeführt. Die berechnete Feldabhängigkeit von θ und α ist für die beiden Spezialfälle $\bar{\vartheta} = 90^\circ$ und $\bar{\vartheta} = 0^\circ$ in der Abb. 21 dargestellt.

Mit den so bestimmten Grössen α und θ kann B_μ in (17) berechnet werden, wenn das Hyperfeinfeld und das Dipolfeld am Myonort bekannt sind. Das Hyperfeinfeld erhält man aus den Nullfeldmessungen, wobei verschiedene Werte erhalten werden, je nachdem welches Vorzeichen für das gemessene Feld B_μ eingesetzt und welcher Zwischengitterplatz als Aufenthaltsort für das Myon angenommen wird. Obwohl das Vorzeichen von B_μ experimentell bestimmt wurde, wurden diese Rechnungen für alle möglichen Kombinationen durchgeführt. Die bei Zimmertemperatur gemessene Feldabhängigkeit von B_μ kann nur dann angepasst werden, wenn angenommen wird, dass sich das Myon am Oktaederplatz aufhält und B_μ negativ ist. Im folgenden werden die für die Rechnung verwendeten Grössen angegeben: $B_{\text{hf}} = -5956 \text{ G}$, $N = 4\pi/3$, $M_D = 1430 \text{ G}$, $K_1 = 4.8 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$, $K_2 = 1.22 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$.

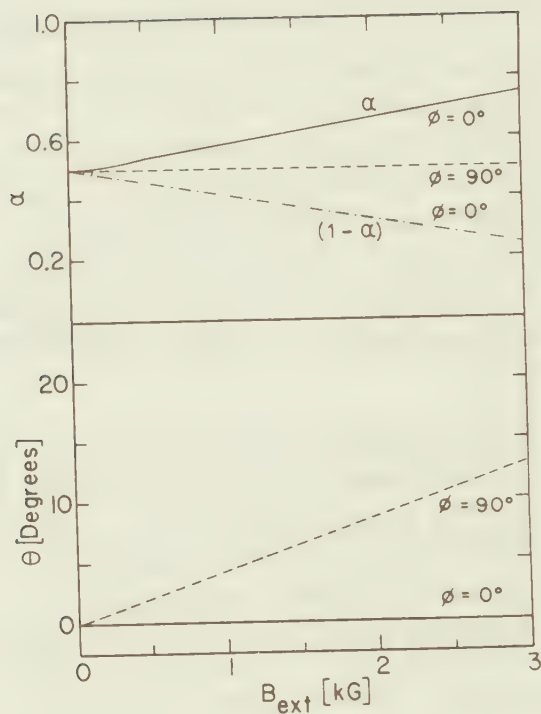


Abb. 21: Feldabhängigkeit von Volumenanteil α und Winkel θ . Für $\tilde{\Phi} = 90^\circ$ (Magnetfeld $\perp$ c-Achse) ändert sich α nicht. Der Winkel θ wird mit zunehmendem Feld grösser. Für $\tilde{\Phi} = 0^\circ$ (Magnetfeld $\parallel$ c-Achse) bleiben die Domänen parallel zur c-Achse orientiert ($\theta = 0^\circ$). Der Volumenanteil α der zum Feld parallel orientierten Domänen nimmt auf Kosten der antiparallel orientierten Domänen zu.

Für die Berechnung des Hyperfeinfeldes wurde folgender Wert des Dipolfeldes verwendet: $B_{\text{dip},x} = 0$ G, $B_{\text{dip},y} = -220$ G. Die experimentellen Daten konnten mit dem oben angegebenen Wert von K_1 optimal angepasst werden. Die Übereinstimmung mit dem aus der Literatur^{12,13,31,32,33,34} entnommenen Mittelwert von $K_1 = 4.65 \cdot 10^6$ erg/cm³ ist gut. Die Rechnun-

gen sind auf den Wert von K_2 nicht empfindlich. Verwendet wurde der in der Literatur³³ angegebene Wert. Die so berechnete theoretische Abhängigkeit des lokalen Feldes B_μ von einem extern angelegten Feld ist in Abb. 16 für die drei Orientierungen $\bar{\Phi} = 0^\circ$, 45° und 90° dargestellt. Die Uebereinstimmung mit den experimentellen Werten ist gut.

In polykristallinem Material sind die Richtungen der c-Achsen statistisch verteilt. Das am Myonort gemessene Magnetfeld ergibt sich durch Mittelung über sämtliche Richtungen $\bar{\Phi}$ der c-Achsen bezüglich der Magnetfeldrichtung im Bereich $0 < \bar{\Phi} < 90^\circ$. Das gemittelte Feld $|\bar{B}_\mu|$ sowie dessen mittlere Abweichung $|\overline{\Delta B}_\mu|$ sind gegeben durch:

$$\overline{B_\mu^2} = \int_0^{\pi/2} B_\mu^2 \sin \theta d\theta \quad (20)$$

$$\overline{\Delta B_\mu^2} = \int_0^{\pi/2} (B_\mu - \bar{B}_\mu)^2 \sin \theta d\theta$$

In der Tabelle III sind für fünf verschiedene Magnetfelder die mit Gl. (17), Gl. (19) und Gl. (20) berechneten Mittelwerte $|\bar{B}_\mu|$ und mittleren Abweichungen $|\overline{\Delta B}_\mu|$ in polykristallinem Kobalt angegeben. Diese theoretischen Werte sind in Abb. 17 zusammen mit den experimentell bestimmten Werten von $|B_\mu|$ als Funktion des extern angelegten Magnetfeldes dargestellt. Infolge der breiten Feldverteilung wird mit zunehmendem externen Magnetfeld eine Depolarisation des Präzessionssignals beobachtet. Oberhalb $B_{\text{ext}} = 600$ G wird deshalb kein Signal mehr beobachtet. Auch hier ist die Uebereinstimmung zwischen theoretischem Verlauf und experimentellen Werten gut.

Tabelle III: Berechnete Feldabhängigkeit des über verschiedene Orientierungen gemittelten Felder $|\bar{B}_\mu|$ in polykristallinem Kobalt. Die mittlere Abweichung $|\overline{\Delta B}_\mu|$ vom Mittelwert ist für die beobachtete starke Depolarisation in polykristallinem Kobalt verantwortlich.

B_{ext} (G)	$ \bar{B}_\mu $ (G)	$ \overline{\Delta B}_\mu $ (G)
0	184	0
100	186	2
200	200	8
400	248	27
800	384	92

3.1.5. Folgerungen

- a) Aus der Interpretation der μSR -Messungen in Kobalt folgt, dass das Dipolfeld, erzeugt durch die magnetischen Momente der Kobalt-d-Elektronen, berücksichtigt werden muss. Die Ergebnisse sind mit der Annahme in Übereinstimmung, dass die magnetischen Momente an den Gitterplätzen lokalisiert sind.
- b) Sowohl aus der Diskussion des Hyperfeinfeldes als Funktion der Temperatur als auch der Feldabhängigkeit von B_μ folgt, dass der Oktaederplatz der Aufenthaltsort des Myons sein muss. Aus den Ergebnissen kann aber nicht darauf geschlossen werden, ob das Myon an diesem Platz lokalisiert ist, oder ob es über äquivalente Plätze diffundiert.
- c) Aus der Feldabhängigkeit von B_μ konnte die Anisotropiekonstante K_1 bestimmt werden. Bei Zimmertemperatur erhält man $K_1 = (4.8 \pm 0.3) \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$.
- d) Aus dem gemessenen Feld B_μ wurde das Hyperfeinfeld als Funktion der Temperatur berechnet. Dieses zeigt eine Abweichung gegenüber dem

Temperaturverlauf der makroskopischen Magnetisierung sowie eine Diskontinuität am Phasenübergang zwischen hcp- und fcc-Struktur bei $T = 690$ K. Beide Erscheinungen sind noch nicht ganz verstanden. Die Diskontinuität kann möglicherweise damit erklärt werden, dass das Myon die Gitterumgebung in den beiden Phasen unterschiedlich stört. Das unterschiedliche Temperaturverhalten von Hyperfeinfeld B_{hf} und makroskopischer Magnetisierung wird auf die Abschirmung der positiven Myonladung durch Leitungselektronen zurückgeführt.

3.2. Gadolinium

Gadolinium ist ein seltenes Erdmetall und kristallisiert im untersuchten Temperaturbereich ($4 \text{ K} < T < 293 \text{ K}$) wie Kobalt in der hcp-Struktur (Abb. 10). Als mögliche Aufenthaltsorte für das Myon kommen ebenfalls der oktaedrische und der tetraedrische Zwischengitterplatz in Frage. Unterhalb der Curietemperatur ($T_c = 293 \text{ K}$) ist Gadolinium ferromagnetisch. Die Sättigungsmagnetisierung bei $T = 0 \text{ K}$ beträgt 2010 G^{35} . Richtung und Betrag der an den Gitterplätzen lokalisierten magnetischen Momente sind durch Neutronenstreuexperimente und Messungen der makroskopischen Magnetisierung bestimmt worden^{36, 37, 38, 39, 40}. Bei 4.2 K ist $|\vec{\mu}| = 7.55 \mu_B$. Der Winkel θ zwischen der Richtung der Magnetisierung und der hexagonalen c-Achse ist wie bei Kobalt eine Funktion der Temperatur. Oberhalb 245 K ist $\theta = 0$, d.h. die Momente sind parallel zur c-Achse orientiert. Unterhalb dieser Temperatur ist θ von null verschieden. Ueber die Werte von $\theta(T)$ werden in der Literatur^{37, 39, 40} unterschiedliche Angaben gemacht. Gurevich et al. haben die Temperaturabhängigkeit von B_μ in Gadolinium untersucht⁴¹. Ihre experimentellen Ergebnisse stimmen mit unseren ungefähr überein. Bei der Interpretation ihrer Daten wurde aber der Einfluss des Dipolfeldes nicht berücksichtigt. Im folgenden wird gezeigt, dass das Dipolfeld wesentlich die Temperaturabhängigkeit von B_μ beeinflusst.

3.2.1. Messergebnisse

In polykristallinem Gadolinium wurde die Temperaturabhängigkeit des μ SR-Signals zwischen 20 K und dem Curiepunkt bei $T = 293$ K gemessen. Die Probe bestand aus einer 8 mm dicken Scheibe mit einem Durchmesser von 18 mm. Sie wurde vor den Messungen bei 1435 K in einer Argonatmosphäre ausgeglüht. Da nur polykristallines Material zur Verfügung stand, wurden keine feldabhängigen Messungen gemacht.

In Abb. 22 ist die Myonpräzessionsfrequenz und das daraus berechnete lokale Feld B_μ als Funktion der Temperatur dargestellt.

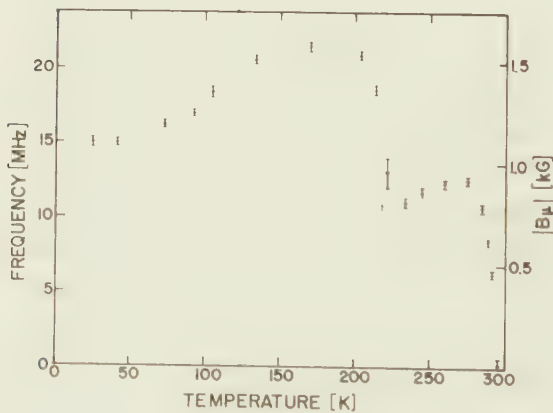


Abb. 22: Temperaturabhängigkeit der Myonspinpräzessionsfrequenz in Gd. Rechts ist die Skala für das lokale Feld B_μ angegeben. Die Curietemperatur von Gd beträgt $T_c = 293$ K.

Wie in Kobalt folgt B_μ nicht einer Magnetisierungskurve. Die Präzessionsfrequenz nimmt bis etwa 150 K langsam zu. Zwischen 200 K und 230 K fällt sie plötzlich mit zunehmender Temperatur ab. Ein weiterer Abfall gegen den Wert null bei T_c ist oberhalb 270 K zu beobachten.

Die in der Abb. 23 dargestellte Relaxationszeit ist als Funktion der Temperatur praktisch konstant ($T_2 = 0.1 \mu s$).

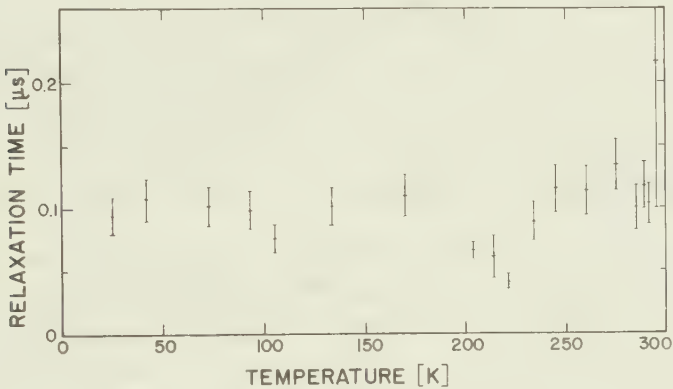


Abb. 23: Relaxationszeit des μ SR-Signals in Gd als Funktion der Temperatur.

Auch die in Abb. 24 dargestellte Asymmetrie ist unabhängig von der Temperatur. Der Mittelwert über sämtliche Temperaturen beträgt $A = 0.08 \pm 0.01$.

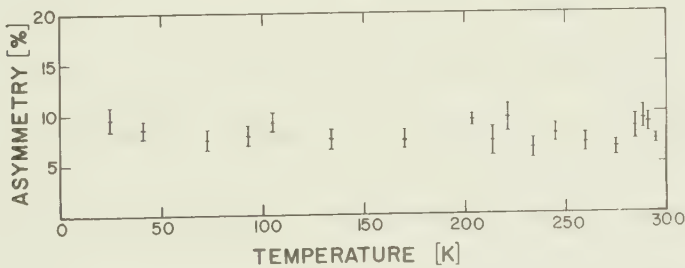


Abb. 24: Asymmetrie des μ SR-Signals in Gd als Funktion der Temperatur.

3.2.2. Diskussion der Messergebnisse

Um die beobachtete Temperaturabhängigkeit von B_μ zu erklären, müssen wieder die einzelnen Beiträge zum Feld am Myonort betrachtet werden (Gl. 14). Ohne externes Magnetfeld ist:

$$(15) \quad \vec{B}_\mu = \vec{B}_L + \vec{B}'_{\text{dip}} + \vec{B}_{\text{hf}}$$

Das Lorentzfeld $\vec{B}_L = 4\pi/3 \vec{M}(T)$ ist durch die Sättigungsmagnetisierung gegeben. Für die Berechnung der Temperaturabhängigkeit von $|\vec{M}(T)| = M_0 (\epsilon(T)/\epsilon(0)) (\vartheta(T)/\vartheta)$ wurde die Temperaturabhängigkeit der Gitterkonstanten berücksichtigt⁴². Bei 0 K ist $a = 3.628 \text{ \AA}$ und $c = 5.795 \text{ \AA}$. ϵ ist die Sättigungsmagnetisierung pro Gramm und ϑ die Dichte.

Das Dipolfeld $\vec{B}'_{\text{dip}}$ wurde wie für Kobalt am Tetraeder- und am Oktaederplatz berechnet. Dabei wurde die Temperaturabhängigkeit der Gitterkonstanten a und c und des magnetischen Moments, welche durch $|\vec{\mu}| = 7.55 \mu_B (M(T)/M(0))$ gegeben ist, mitberücksichtigt. Das Verhalten von B_μ als Funktion der Temperatur wird im wesentlichen durch das Dipolfeld bestimmt. Der Grund liegt darin, dass sich das Lorentzfeld $\vec{B}_L$ und das Hyperfeinfeld $\vec{B}_{\text{hf}}$ bei einer Änderung der leichten Richtung der Magnetisierung nicht gleich transformieren wie das Dipolfeld. Nimmt man an, dass das Hyperfeinfeld die Richtung der Domänenmagnetisierung folgt, können $\vec{B}_{\text{hf}}$ und $\vec{B}_L$ zu einer Grösse $\vec{X}(\theta)$ zusammengefasst werden, welche folgende Winkelabhängigkeit zeigt:

$$(21) \quad \vec{X}(\theta) = X(\sin \theta, 0, \cos \theta) = \vec{B}_{\text{hf}} + \vec{B}_L$$

Das Dipolfeld hängt vom Winkel θ aber folgendermassen ab:

$$(22) \quad \vec{B}'_{\text{dip}} = \mu D_{xx} (\sin \theta, 0, -2\cos \theta)$$

D_{xx} ist der in Gl. (13) eingeführte Dipoltensor und μ das lokalisierte magnetische Moment an den Plätzen der Gadoliniumionen. Aus den Gleichungen

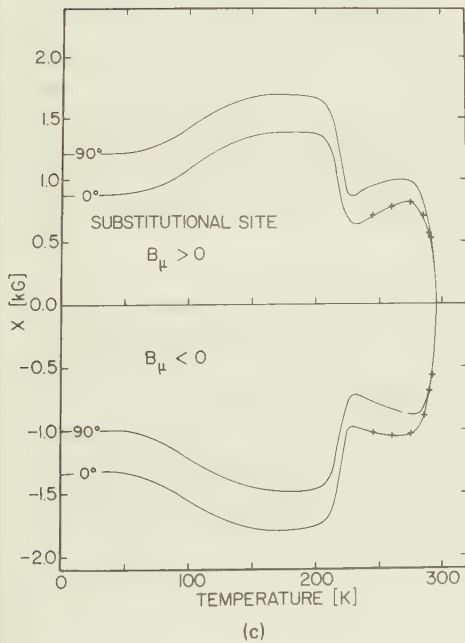
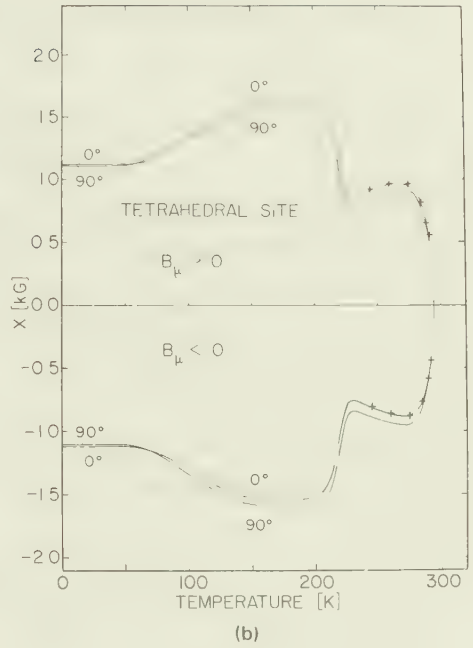
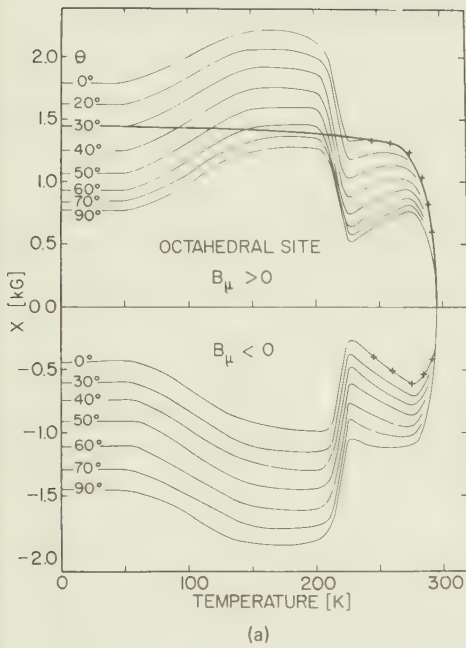


Abb. 25:

Dargestellt ist die Lösung $X(T)$ der Gl. (23) für verschiedene mögliche Aufenthaltsorte des Myons. Der Parameter θ ist der Winkel zwischen der hexagonalen c -Achse und der leichten Richtung der Magnetisierung. Da das Vorzeichen von B_μ unbekannt ist, wurden die Rechnungen sowohl für $B_\mu < 0$ als auch $B_\mu > 0$ durchgeführt. Nur für den Oktaederplatz mit $B_\mu > 0$ lässt sich eine Kurve $X(T)$ durch die Messpunkte (+) zeichnen, welche stetig und proportional der Magnetisierung ist (stark ausgezogene Kurve).

chungen Gl. (15), Gl. (21) und Gl. (22) erhält man folgende quadratische Gleichung für X:

$$(23) \quad X^2 + 2X \mu D_{xx} (1 - 3 \cos^2 \theta) + \mu^2 D_{xx}^2 (1 + \cos^2 \theta) = B_\mu^2$$

Da das Vorzeichen von B_μ experimentell nicht bestimmt werden konnte, mussten beide Möglichkeiten, nämlich B_μ überall positiv bzw. negativ offen gelassen werden. Ein Vorzeichenwechsel von B_μ im untersuchten Temperaturbereich konnte ausgeschlossen werden, da B_μ nur für $T \rightarrow T_c$ gegen null geht. Sowohl für $B_\mu < 0$ als auch $B_\mu > 0$ wurde die Temperaturabhängigkeit von X für den Oktaederplatz, den Tetraederplatz und einen Gitterplatz berechnet. Das Ergebnis dieser Rechnungen mit dem Winkel θ als Parameter ist in Abb. 25 dargestellt.

Für $T > 230$ K muss X auf der Kurve mit dem Parameter $\theta = 0^\circ$ liegen. Die Kreuze (+) in Abb. 27 stellen die aus den μ SR-Messungen berechneten X-Werte für $\theta = 0$ dar. Aus der Forderung dass X(T) stetig und als Summe aus Hyperfeinfeld und Lorentzfeld einer Magnetisierungskurve folgt, kann die gemessene Kurve zu tieferen Temperaturen interpoliert werden (stark ausgezogene Kurve in Abb. 27). Es zeigt sich, dass diese Forderung nur für den Oktaederplatz mit $B_\mu > 0$ erfüllt werden kann. Für alle anderen untersuchten Fälle lässt sich X(T) nicht stetig zu tieferen Temperaturen fortsetzen. Dies lässt den Schluss zu, dass wie in Kobalt der Oktaederplatz mit grosser Wahrscheinlichkeit der Aufenthaltsort des Myons ist.

Aus dem Verlauf von X(T) (Abb. 25a) kann der Winkel θ zu jeder Temperatur T durch Herauslesen bestimmt werden. Die so erhaltene Temperaturabhängigkeit des Winkels θ zwischen hexagonaler c-Achse und der leichten Richtung der Magnetisierung ist in der Abb. 26 dargestellt (ausgezogene Kurve). Die gestrichelte Kurve sowie die Dreiecke sind Ergebnisse aus Drehmomentenmessungen^{37,38,39}. Die schwarzen Punkte sind Ergebnisse aus Neutronstreuexperimenten⁴⁰.

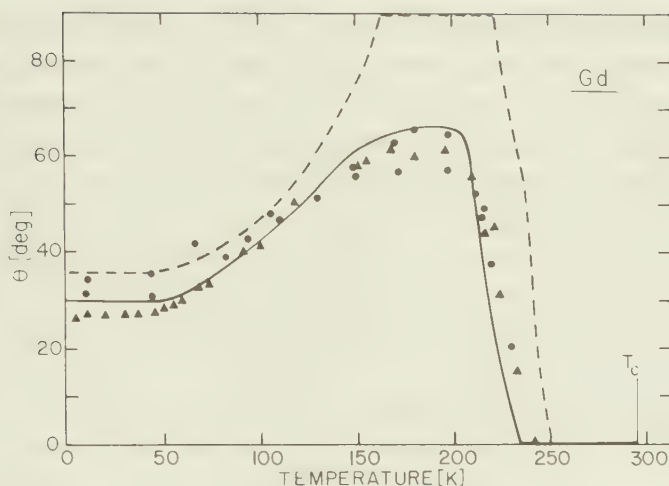


Abb. 26: Winkel θ zwischen hexagonaler c-Achse und leichten Richtung der Magnetisierung in Gd als Funktion der Temperatur. Die ausgezogene Kurve wurde aus diesem Experiment bestimmt. Die gestrichelte Kurve sowie die Dreiecke ($\blacktriangle$) sind Ergebnisse aus Drehmomentenmessungen^{37,38,39}. Die schwarzen Punkte ($\bullet$) wurden aus Neutronstreumessungen⁴⁰ erhalten.

Unter der Voraussetzung, dass $X(T)$ wie in Abb. 25 dargestellt, von der Temperatur abhängt, kann das Hyperfeinfeld $B_{hf}(T)$ durch Subtraktion des Lorentzfeldes $B_L(T)$ berechnet werden. Das Ergebnis ist in Abb. 27 dargestellt.

Die ausgezogene Kurve stellt das für den Oktaederplatz berechnete Hyperfeinfeld am Myonort dar. Gestrichelt ist der Temperaturverlauf der auf $B_{hf}(0)$ normierten Sättigungsmagnetisierung dargestellt.

Bei 0 K beträgt das Hyperfeinfeld $B_{hf} = -6,9 \pm 0,2$ kG. Neutronstreumessungen von Moon et al.³⁶ ergeben am Oktaederplatz eine Magnetisierung von $-0,342$ kG. Das mit Gl. (12) aus diesem Wert berechnete und mit dem obigen Wert vergleichbare Hyperfeinfeld beträgt $B_{hf} = -2,87$ kG. Ob-

wohl die Vorzeichen übereinstimmen, ist der aus den μ SR-Messungen erhaltene Wert um einen Faktor 2.5 grösser als der aus den Neutronenstrommessungen berechnete Wert. Der Unterschied wird damit erklärt, dass die Elektronenspindichte durch das Myon geändert wird. Jena⁴³ hat den Verstärkungsfaktor für die Spindichte bei Anwesenheit des Myons in Gadolinium berechnet. Er erhält im Rahmen seines Modells eines freien Elektronengases eine Verstärkung der ungestörten Spindichte um einen Faktor zehn.

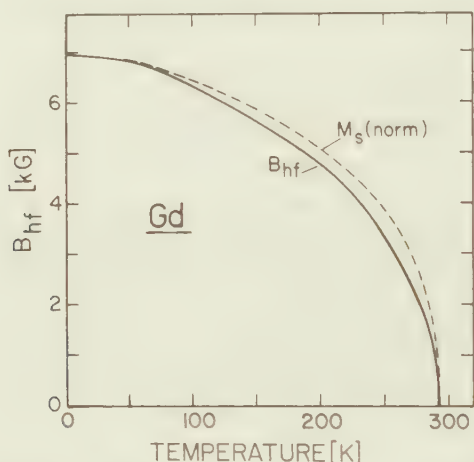


Abb. 27: Temperaturabhängigkeit des Hyperfeinfeldes am Myonort (oktaedrischer Zwischengitterplatz) in Gd. Die gestrichelte Linie stellt die Sättigungsmagnetisierung normiert auf den Wert des Hyperfeinfeldes bei $T = 0$ K dar.

Vergleicht man den Temperaturverlauf des Hyperfeinfeldes mit demjenigen der Sättigungsmagnetisierung so beobachtet man eine deutliche Abweichung zwischen den beiden Grössen als Funktion der Temperatur. Ähnliche Beobachtungen wurden auch bei Messungen des Hyperfeinfeldes am Ort nichtmagnetischer Verunreinigungen in Gadolinium gemacht⁴⁴. Während Modelle^{45,46,47}, welche zur Erklärung dieses Verhaltens vorgeschlagen wurden, einen linearen Zusammenhang zwischen Hyperfeinfeld

und Magnetisierung ergeben, erhält Meier⁴⁸ in seinem Modell als Folge der Abschirmung der Myonladung auch Beiträge, welche nichtlinear mit der Magnetisierung zusammenhängen. Die in diesem Modell berechneten Abweichungen zwischen Hyperfeinfeld und Magnetisierung als Funktion der Temperatur stimmen mit den Messungen ungefähr überein.

Da bei den seltenen Erdmetallen der Ueberlapp zwischen Myon und lokalisierten 4f-Elektronen vermutlich gering ist, sollte im Gegensatz zu den Uebergangsmetallen Eisen, Kobalt und Nickel der Einfluss der lokalisierten Elektronen auf das Hyperfeinfeld vernachlässigt und der Beitrag der Leitungselektronen zuverlässiger berechnet werden können. Die Rechnungen von Meier⁴⁸ sind deshalb nicht ohne weiteres auf den Fall von Kobalt anwendbar.

3.2.3. Folgerungen

- a) Wie im Fall von Kobalt wurde gezeigt, dass der Einfluss des Dipolfeldes auf das lokale Feld B_{μ} nicht vernachlässigt werden darf.
- b) Aus dem gemessenen Verlauf von B_{μ} konnte die Temperaturabhängigkeit des Winkels θ zwischen hexagonaler c-Achse und Magnetisierung bestimmt werden.
- c) Wie in Kobalt, ist der Oktaederplatz der Aufenthaltsort des Myons. Eine Aussage darüber, ob es an diesem Platz lokalisiert ist, oder über diese Plätze diffundiert, konnte mit den vorhandenen Daten nicht gemacht werden.
- d) Im ganzen ferromagnetischen Bereich von Gadolinium wurde das Hyperfeinfeld bestimmt. Dieses weicht vom Verlauf der Sättigungsmagnetisierung ab. Sein Wert beträgt bei 0 K $B_{\text{hf}}(0) = -6.9 \pm 0.2$ kG. Das Vorzeichen stimmt mit Ergebnissen aus Neutronstremessungen überein. Der in dieser Arbeit erhaltene Wert ist aber um einen Faktor 2.5 grös-

ser. Der Unterschied wird durch eine Aenderung der Elektronenspindichte erklärt. Der nichtlineare Zusammenhang zwischen Sättigungsmagnetisierung und Hyperfeinfeld B_{hf} als Funktion der Temperatur wird in einem Modell von Meier⁴⁸ erklärt.

3.3. Eisen

Die ersten μ SR-Messungen in Eisen wurden durch Foy et al.⁴⁹ und Gurevich et al.^{50,51} durchgeführt. Die Experimente wurden mit polykristallinen Proben gemacht. Die gemessenen Felder B_μ am Myonort zeigten ausserhalb der Messfehler liegende Abweichungen. Selbst über das Vorzeichen von B_μ bestand keine Gewissheit. Auch für die Relaxationsrate λ wurden unterschiedliche Angaben gemacht. Während λ wesentlich durch die Reinheit und die Art der Probe (polykristallin oder einkristallin) beeinflusst wird, sollte dies für das mittlere Feld B_μ bei Zimmertemperatur nicht der Fall sein. Da am SIN ein Myonstrahl mit hoher Intensität zur Verfügung steht, ist es möglich, einkristalline Proben beschränkter Grösse aber bedeutend höherer Reinheit zu untersuchen.

Das Uebergangsmetall Eisen kristallisiert im untersuchten Temperaturbereich 4-1043 K in der kubisch raumzentrierten bcc-Struktur. In der Abb. 28 ist die Elementarzelle dieses Gitters mit den möglichen Aufenthaltsorten des Myons dargestellt.

An den Würfecken und im Zentrum des Würfels sind die Eisenatome. Mögliche Aufenthaltsorte für das Myon sind der oktaederische (o) und der tetraederische (Δ) Zwischengitterplatz. Die Gitterkonstante bei 293 K beträgt $a = 2.86645 \pm 0.00001 \text{ \AA}^{14}$. Sie ist temperaturabhängig. Bei 0 K ist a um 0.2% kleiner als bei 293 K. Die Temperaturabhängigkeit der Gitterkonstante wird bei der Berechnung der Dipolfelder und der Magnetisierung berücksichtigt.

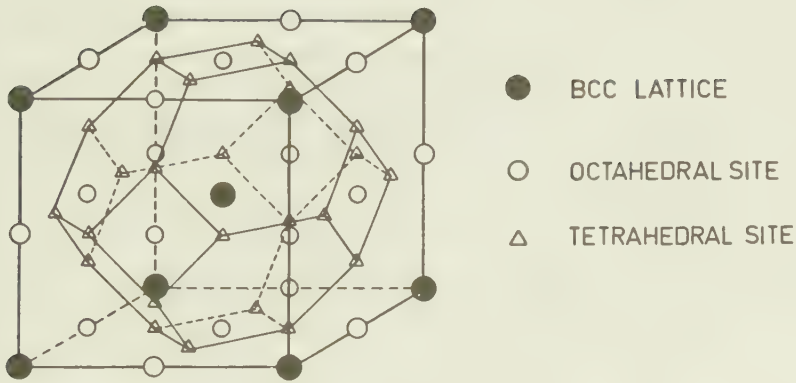


Abb. 28: Einheitszelle im bcc-Gitter von Eisen. Die schwarzen Punkte markieren die Lagen der Eisenatome. Die offenen Kreise (o) sind die oktaedrischen und die Dreiecke die tetraedrischen Zwischengitterplätze.

Folgende Approximationen werden für den linearen Ausdehnungskoeffizienten angegeben⁵²:

$$(24) \quad \begin{aligned} 5 < T < 300 \text{ K} \quad & \frac{\Delta a}{a} = \sum_0^k c_k (T - 5)^k \\ 300 < T < 1185 \text{ K} \quad & \frac{\Delta a}{a} = \sum_0^k b_k (T - 300)^k \end{aligned}$$

Die Koeffizienten c_k und b_k sind in der Tabelle IV zusammengefasst.

An den Gitterplätzen sind die magnetischen Momente ($\mu = 2.217 \mu_B$)⁵³ der 3d-Elektronen lokalisiert. Unterhalb der Curietemperatur ($T_c = 1043 \text{ K}$) sind sie innerhalb der Domänen parallel zueinander ausgerichtet. Die Domänen selbst sind entlang den leichten Richtungen der Magnetisierung orientiert. In Eisen sind dies die Richtungen entlang der Würfelkanten ([100]-Richtungen). Die Sättigungsmagnetisierung bei 0 K beträgt

$M_O(0) = 1750$ G. Die Temperaturabhängigkeit ist durch $M(T) = M_O (\epsilon(T)/\epsilon(0) (\varphi(T)/\varphi(0))$ gegeben. ϵ ist die Sättigungsmagnetisierung pro Gramm⁵³ und φ die Dichte bei der Temperatur T.

Tabelle IV: Koeffizienten zur Berechnung der Temperaturabhängigkeit von $\Delta a/a$ von Eisen⁵².

k	c_k	b_k
0	-0.206	0.007
1	$-5.905 \cdot 10^{-5}$	$1.210 \cdot 10^{-3}$
2	$3.650 \cdot 10^{-6}$	$6.504 \cdot 10^{-7}$
3	$-3.389 \cdot 10^{-9}$	$3.140 \cdot 10^{-10}$

Die in der Abb. 28 eingezeichneten Zwischengitterplätze haben tetragonale Symmetrie. Deshalb ist an diesen Plätzen das Dipolfeld der umgebenden lokalisierten magnetischen Momente von null verschieden. Es gibt Oktaederplätze (Tetraederplätze) deren tetragonale Achse parallel und solche die senkrecht zur Magnetisierungsrichtung orientiert sind. Ist die Magnetisierung parallel zur [001]-Richtung, ergeben sich folgende Werte für die Dipolfelder an den beiden Zwischengitterplätzen (Tabelle V)

Tabelle V: Dipolfelder am Oktaeder- und Tetraederplatz mit der tetragonalen Achse parallel bzw. senkrecht zur leichten Richtung der Magnetisierung. In Klammern ist die Häufigkeit dieser Plätze pro Metallatom in der Elementarzelle angegeben.

	$B_{\text{dip}}^{\parallel}$	$B_{\text{dip}}^{\perp}$
Oktaederplatz (3)	+18.52 kG	-9.26 kG
Tetraederplatz (6)	-5.25 kG	+2.63 kG

Ist die Probe entlang der [111]-Richtung magnetisiert, sind die Dipolfelder an allen Oktaederplätzen (Tetraederplätzen) dem Betrag nach gleich

und senkrecht zur Magnetisierungsrichtung orientiert ($B_{\text{dip}}^{\text{(okt)}} = 13.10 \text{ kG}$, $B_{\text{dip}}^{\text{(tetr)}} = 3.71 \text{ kG}$).

Eine statistische Mittelung über die Dipolfelder sowohl an den Oktaeder- als auch an den Tetraderplätzen in der Elementarzelle ergibt null. Diffrundiert das Myon genügend rasch über die elektrostatisch äquivalenten Zwischengitterplätze, ist es in der Lage, diese Dipolfelder zu null auszumitteln. Bleibt es andererseits genügend lang an den einzelnen Plätzen lokalisiert, müssten im Fourierspektrum zwei charakteristische Präzessionsfrequenzen mit einem Amplitudenverhältnis von 2:1 auftreten.

3.3.1. Experimentelle Ergebnisse

Ohne externes Magnetfeld wurde das Temperaturverhalten des lokalen Feldes B_{μ} und der Relaxationsrate $\lambda = 1/T_2$ im Temperaturbereich 4-1043 K untersucht. Unterhalb Zimmertemperatur wurden die Messungen mit einer 4 cm langen zylinderförmigen Probe mit einem Durchmesser von 8 mm gemacht. Oberhalb Zimmertemperatur wurde eine etwas kleinere ellipsoidförmige Probe (Hauptachsen 20 bzw. 8 mm) aus demselben Material verwendet. Für die Messungen an hochreinem polykristallinem Material wurde eine Target bestehend aus zwanzig 3 cm langen zylinderförmigen Stäben mit einem Durchmesser von je 3 mm verwendet. Die Reinheit der Probe (99.997%) war besser als diejenige des Einkristalls. Vor der Messung wurden die Stäbe in einer Wasserstoffatmosphäre während einer Stunde bei 1400 K ausgeglüht.

Im gesamten untersuchten Temperaturbereich wurde nur ein Präzessionssignal beobachtet. In der Abb. 29 ist die gemessene Frequenz ν_{μ} und das entsprechende lokale Feld B_{μ} (rechte Skala) als Funktion der Temperatur dargestellt. Die Zeitspektren wurden wie für Kobalt ausgewertet. Im Einkristall wurden unter 100 K keine μSR -Signale mehr beobachtet. Im polykristallinen Material konnte die Frequenz bis 16 K verfolgt werden.

Unterhalb 100 K waren aber auch diese Signale stark verbreitert. Bei den stark relaxierenden Signalen wurde die Präzessionsfrequenz aus der Fouriertransformation des Zeitspektrums entnommen. Die für diese Werte angegebenen Fehler wurden aus der Fouriertransformation abgeschätzt. Bei 4 K wurde kein Präzessionssignal beobachtet. Bei Temperaturen unter 200 K ergeben sich starke Abweichungen zwischen den Messungen am Einkristall und denjenigen am polykristallinen Material.

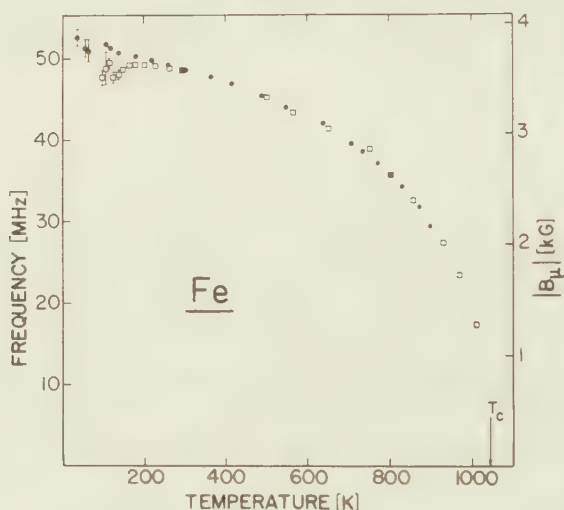


Abb. 29: Temperaturabhängigkeit der Präzessionsfrequenz in polykristallinem (●) und einkristallinem (□) Eisen. Auf der rechten Skala ist der Betrag des lokalen Feldes angegeben. $T_c = 1043$ K ist die Curietemperatur von Eisen.

In der Abb. 30 ist die Temperaturabhängigkeit der Relaxationsrate $\lambda = 1/T_2$ im polykristallinen Material dargestellt. Bei tiefen Temperaturen relaxiert das Signal stark. Oberhalb 100 K beobachtet man einen Abfall der Relaxationsrate λ der aber zwischen 300 und 600 K wieder abflacht. Oberhalb 600 K erfolgt eine erneute starke Abnahme von λ . In der Tendenz stimmen diese Messungen mit den hier nicht dargestellten Messungen im einkristallinen Material überein.

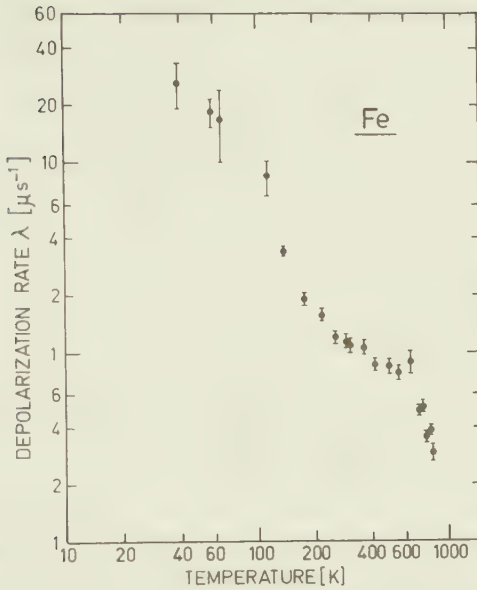


Abb. 30: Relaxationsrate als Funktion der Temperatur in polykristallinem Eisen.

Die Asymmetrie als Funktion der Temperatur ist in der Abb. 31 dargestellt. Die Messungen am polykristallinen Material zeigen, dass die Asymmetrie im wesentlichen unabhängig von der Temperatur ist. Die geringere Asymmetrie im Einkristall (offene Kreise) bei höheren Temperaturen kann mit dem hohen Untergrund, erzeugt durch Myonen, welche im Ofenmaterial gestoppt werden, erklärt werden. Für die Messungen am polykristallinen Material wurde ein Ofen mit dünneren Eintrittsfenstern verwendet. Die polykristalline Probe war zudem grösser als die Einkristallprobe. Damit erhält man ein günstigeres Verhältnis von Probensignal zu Untergrundsignal und somit ein grösseres A.

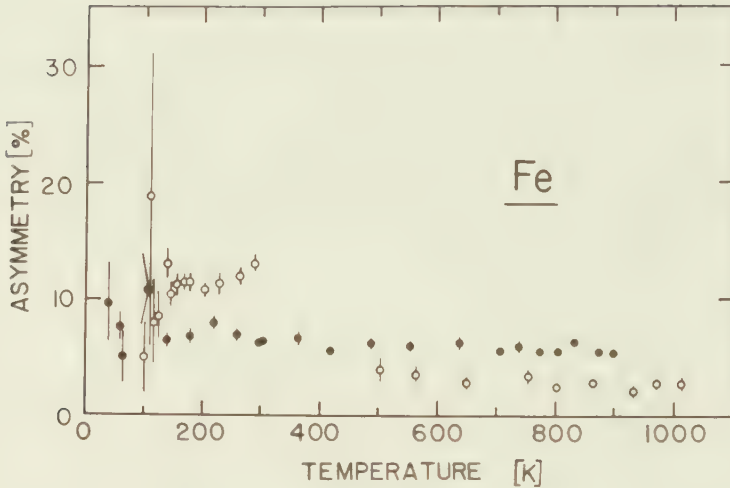


Abb. 31: Asymmetrie als Funktion der Temperatur in polykristallinem (●) und einkristallinem (○) Eisen. Die Messungen am polykristallinen Material zeigen, dass A unabhängig von der Temperatur ist.

Bei Zimmertemperatur wurde die Feldabhängigkeit von B_μ in der zylinderförmigen Einkristallprobe untersucht. Das Ergebnis der Messungen ist in der Abb. 32 dargestellt. Im untersuchten Feldbereich wird nur eine Präzessionsfrequenz beobachtet. Unterhalb des Sättigungsfeldes B_s ist das lokale Feld B_μ unabhängig vom extern angelegten Magnetfeld. Oberhalb B_s nimmt B_μ mit zunehmendem externen Magnetfeld ab. Oberhalb $B_{\text{ext}} = 4 \text{ kG}$ wird ein linearer Anstieg mit dem äusseren Feld beobachtet. Dies bedeutet, dass das Feld B_μ ohne extern angelegtes Magnetfeld negativ, d.h. antiparallel zur Domänenmagnetisierung $\vec{M}$ orientiert ist.

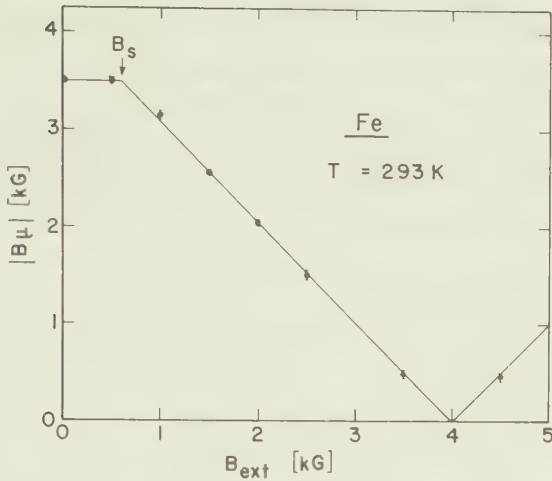


Abb. 32: Abhängigkeit des lokalen Feldes B_μ am Ort des Myons von einem extern angelegten Magnetfeld. Unterhalb des Sättigungsfeldes B_s ist B_μ unabhängig vom externen Magnetfeld. Die Abnahme von B_μ mit zunehmendem externen Magnetfeld bedeutet, dass $\vec{B}_\mu$ antiparallel zur Magnetisierung $\vec{M}$ orientiert ist.

Die Grösse des Sättigungsfeldes B_s hängt vom Entmagnetisierungsfeld $\vec{B}_{dem} = -N\vec{M}$ (Gl. 14) ab. Der Entmagnetisierungsfaktor N ist von der Probenform abhängig. Für die verwendete zylinderförmige Probe ist $B_s = 590\text{ G}$.

3.3.2. Diskussion der Messergebnisse

a) Hyperfeinfeld

In Eisen wird im untersuchten Temperaturbereich nur eine Frequenz beobachtet. Da an den Zwischengitterplätzen stark unterschiedliche Dipolfelder existieren, kann dies nur damit erklärt werden, dass das Myon sehr rasch über diese Plätze diffundiert und die Dipolfelder zu null aus-

mittelt. Bei Zimmertemperatur wurde das Vorzeichen von B_{μ} bestimmt. Aus den Messungen ohne externes Magnetfeld kann damit das Hyperfein-
feld als Funktion der Temperatur berechnet werden, wenn vom gemessenen Feld B_{μ} das bekannte Lorentzfeld $\vec{B}_L = (4\pi/3)\vec{M}(T)$ subtrahiert wird. Das so berechnete Hyperfeinfeld in Eisen ist als Funktion der Temperatur in der Abb. 33 dargestellt.

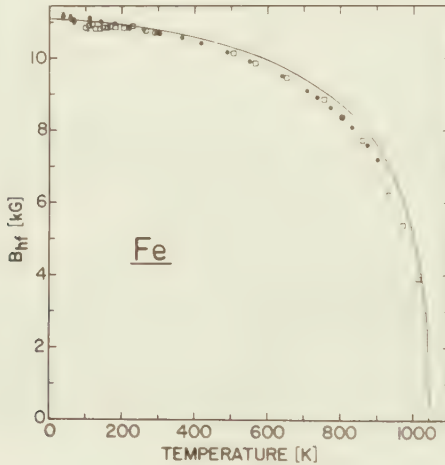


Abb. 33: Temperaturabhängigkeit des Hyperfeinfeldes in Eisen. Die offenen Vierecke ($\square$) sind Ergebnisse aus Messungen am Einkristall. Die schwarzen Punkte ($\bullet$) stellen Messungen am polykristallinen Material dar. Für Messpunkte ohne Fehlerangabe ist dieser von der Größenordnung der Punkte. Die ausgezogene Kurve stellt die auf den Wert von B_{hf} bei 0 K normierte Magnetisierungskurve dar.

Die ausgezogene Kurve ist die bei $T = 0$ K auf das Hyperfeinfeld $B_{hf}(0) = 11.2 \pm 0.2$ kG normierte Sättigungsmagnetisierung. Oberhalb 200 K stimmen die Werte aus den Messungen mit der einkristallinen ($\square$) und mit der polykristallinen Probe ($\bullet$) überein. Für die Abweichungen unterhalb 200 K werden Verunreinigungen verantwortlich gemacht. Durch sie verursachte Gitterverzerrungen sind in der Lage, die Myondiffusionsrate zu verkleinern

oder das Myon einzufangen. An solchen Stellen ist aber das Hyperfein-
feld nicht gleich wie in einer ungestörten Umgebung des Gitters.

Neutronstreuexperimente haben in Eisen eine komplizierte Magnetisie-
rungsverteilung in der Elementarzelle ergeben. Diese ist in der Abb. 34
dargestellt⁵⁴.

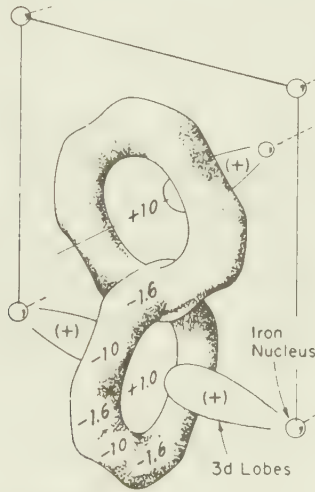


Abb. 34: Magnetisierungsverteilung im bcc-Gitter von Eisen (Ref. 54)
Die angegebenen Werte haben die Dimension kG.

Diese Methode gibt gute Werte für die Magnetisierungsverteilung in
der Umgebung der Gitterplätze, hingegen ist die Auflösung im Zwi-
schengitterbereich beschränkt. In diesem Gebiet wird die Magnetisierung
über einen gewissen Bereich gemittelt. Die so bestimmte Werte sind
 $M = 0.0085 \pm 0.0068 \mu_B / \text{\AA}^3$ für den Tetraederplatz⁵⁵. Das durch diese Magneti-
sierung erzeugte und mit Gl. (12) berechnete Hyperfeinfeld am Myonort be-

trägt am Oktaederplatz $B_{hf} = -0.653 \text{ kG}$ und am Tetraederplatz $B_{hf} = -1.06 \text{ kG}$. Am Tetraederplatz stimmen die Vorzeichen der mit μSR und Neutronstreuung gemessenen Hyperfeinfelder überein. Das mit μSR gemessene Hyperfeinfeld in Eisen ist aber um etwa einen Faktor 10 grösser. Wie in Kobalt und Gadolinium muss dies damit erklärt werden, dass die lokale elektronische Struktur durch die Myonladung geändert wird oder, dass die Anwesenheit des Myons sogar die magnetischen Eigenschaften der benachbarten Gitterionen ändert.

b) Diffusion

In der Abb. 30 ist die Relaxationsrate λ als Funktion der Temperatur in polykristallinem Eisen dargestellt. Da nur eine Frequenz beobachtet wird, muss das Myon extrem rasch diffundieren um die Dipolfelder ausmitteln zu können. Im Bereich rascher Bewegung (Motional narrowing) besteht zwischen λ und der Korrelationszeit τ_c folgender Zusammenhang⁵⁵:

$$(25) \quad \lambda = \langle \omega^2 \rangle \tau_c$$

τ_c ist ein Mass für die mittlere Verweilzeit am Zwischengitterplatz und $\langle \omega^2 \rangle$ ist das zweite Moment der Feldverteilung. Wenn in Eisen nur Sprünge zwischen benachbarten Oktaeder- oder Tetraederplätzen stattfinden, kann λ folgendermassen geschrieben werden:

$$(26) \quad \lambda = 2 (\gamma_\mu B_{\text{dip}}^\perp)^2 \tau_c = \frac{1}{2} (\gamma_\mu B_{\text{dip}}^\parallel)^2 \tau_c$$

γ_μ ist das gyromagnetische Verhältnis und $B_{\text{dip}}^\parallel$ ($B_{\text{dip}}^\perp$) sind die in der Tabelle V angegebenen Dipolfelder am Tetraeder- oder Oktaederplatz mit der tetragonalen Achse parallel bzw. senkrecht zur Magnetisierungsrichtung. Das Dipolfeld ist proportional der Magnetisierung $M(T)$ und nimmt mit zunehmender Temperatur ab. Um eine Aussage über die Temperaturabhängigkeit von τ_c und damit über die Diffusion machen zu können, muss

$T_2 = 1/\lambda$ mit einem Faktor $(M(T)/M(0))^2$ normiert werden. Die so korrigierten Werte $T_2(\text{corr})$ sind in der Abb. 35 als Funktion der inversen Temperatur aufgetragen.

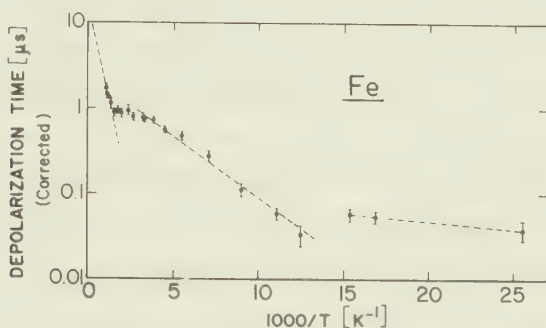


Abb. 35: Mit der Sättigungsmagnetisierung korrigierte Depolarisationszeit $T_2(\text{corr})$ in polykristallinem Eisen. Drei Temperaturbereiche mit verschiedenen Aktivierungsenergien können beobachtet werden.

Unter der Annahme, dass die Diffusion durch einen thermisch aktivierten Prozess erfolgt, wird die Sprungrate $\nu = 1/6 \tau_c \sim T_2(\text{corr})^{56}$ durch ein Arrheniusgesetz beschrieben.

$$(27) \quad \nu = \nu_0 \exp(-E_a/kT)$$

E_a ist die Aktivierungsenergie für den Sprungprozess, k_B die Boltzmannkonstante und T die Temperatur. Der Vorfaktor ν_0 ist der Wert von ν für $1/T = 0$. Wie die Abb. 35 zeigt, können die Daten nicht im gesamten Temperaturbereich mit einem einzigen Arrheniusgesetz angepasst werden.

Die Anpassung der Daten an Gl. (27) ergibt im Hochtemperaturbereich ($T > 650$ K) $E_a = 124 \pm 35$ meV und für den Temperaturbereich zwischen 80 K und 350 K $E_a = 19 \pm 2$ meV. Im Bereich tiefer Temperaturen ($T < 80$ K) ist es schwierig, eine Aktivierungsenergie an die drei vorhandenen

Messpunkte anzupassen. Auf jeden Fall ist es klar, dass sie äusserst klein wäre.

Der Vorfaktor in Gl. (27) hängt mit der Diffusionskonstante D folgendermassen zusammen⁵⁶:

$$(28) \quad D(\text{oct}) = \frac{a^2}{36 \tau_c} \quad \text{Oktaeder-Oktaeder-Sprünge}$$

$$(29) \quad D(\text{tetr}) = \frac{a^2}{72 \tau_c} \quad \text{Tetraeder-Tetraeder-Sprünge}$$

a ist die Gitterkonstante und $\tau_c = 1/6\nu$ die Korrelationszeit. Die mit Gl. (28) bzw. Gl. (29) berechneten Diffusionskonstanten $D_o(\text{oct})$ und $D_o(\text{tetr})$ sind in der Tabelle VI zusammen mit der Aktivierungsenergie und den Diffusionskonstanten von Wasserstoff in Eisen⁵⁷ angegeben.

Tabelle VI: Aktivierungsenergie E_a und Diffusionskonstante D_o für die Myon- und Wasserstoffdiffusion in Eisen. Für den Wasserstoff sind zuverlässige Daten nur oberhalb 300 K vorhanden⁵⁷.

		80 < T < 300 K	T > 600 K
Myon	E_a (meV)	19 ± 2	124 ± 35
	D_o (oct) $\frac{\text{cm}^2}{\text{S}}$	$8.4 \cdot 10^{-5}$	$4.9 \cdot 10^{-4}$
	D_o (tetr) $\frac{\text{cm}^2}{\text{S}}$	$3.3 \cdot 10^{-6}$	$1.7 \cdot 10^{-5}$
Wasserstoff (T > 300 K)	E_a (meV)	—	105
	D_o $\frac{\text{cm}^2}{\text{S}}$	—	$7.5 \cdot 10^{-4}$

Ein Vergleich der Werte in Tabelle VI ergibt folgendes:

1. Die Myondiffusion muss mit mindestens zwei Aktivierungsenergien beschrieben werden. Für die Bestimmung einer dritten Aktivierungsenergie unterhalb 80 K sind die Daten nicht ausreichend.

2. Bei höheren Temperaturen ($T > 600$ K) stimmen die Aktivierungsenergien für Wasserstoff- und Myondiffusion innerhalb des Fehlers miteinander überein.
3. Die kleine Aktivierungsenergie unterhalb 300 K konnte bisher bei der Wasserstoffdiffusion in Eisen nicht beobachtet werden, da die wenigen vorhandenen Daten stark streuen⁵⁷.
4. Im Temperaturbereich $T > 600$ K sind die Vorfaktoren D_0 von Myon- und Wasserstoffdiffusion von derselben Grössenordnung.
5. Im Temperaturbereich $80 < T < 300$ K ist die Diffusionskonstante des Myons um zwei Grössenordnungen kleiner als bei hohen Temperaturen.

Aus den Punkten zwei und vier kann geschlossen werden, dass sich die Myondiffusion und die Wasserstoffdiffusion im Grenzfall hoher Temperaturen nicht wesentlich unterscheiden. Der vorherrschende Diffusionsprozess ist im Temperaturbereich $T > 600$ K mit grosser Wahrscheinlichkeit ein Sprungprozess über die Potentialbarriere (Abb. 36).

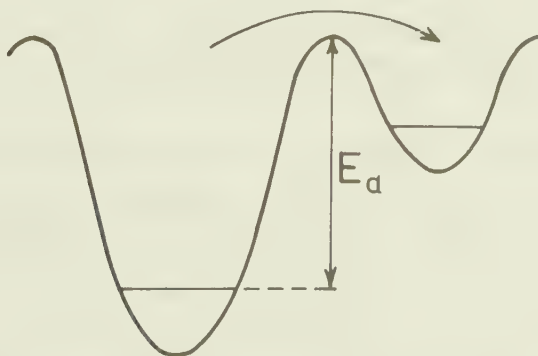


Abb. 36: Thermisch aktivierte Diffusion. E_a ist die Aktivierungsenergie für das Ueberspringen der Potentialbarriere.

Bei einem solchen Prozess ist die Aktivierungsenergie unabhängig von der Masse des diffundierenden Teilchens. Die Diffusionskonstante sollte nach der klassischen Ratentheorie⁵⁸ proportional $1/\sqrt{m}$ sein, wo m die Masse des diffundierenden Teilchens ist. Wegen der grossen Streuung

der Wasserstoffdaten und dem noch unbekannten Aufenthaltsort des Myons in Eisen kann nichts über die Isotopenabhängigkeit von D_0 ausgesagt werden. Dadurch, dass das Myon die Potentialbarriere überspringt, ist es während seiner Lebensdauer in der Lage, über eine grosse Anzahl Zwischengitterplätze zu hüpfen. Langreichweitige Störungen im lokalen Magnetfeld werden damit ausgemittelt und die Relaxationsrate nimmt stark ab.

Zwischen 80 K und 300 K ist die Aktivierungsenergie und die Diffusionskonstante um eine Grössenordnung kleiner als bei höheren Temperaturen. Auch in diesem Bereich wird aber nur eine Frequenz beobachtet. Die verschiedenen Dipolfelder werden noch immer zu Null gemittelt, obwohl eine Abschätzung der mittleren Verweilzeit des Myons am Zwischengitterplatz bei $T = 80$ K mit den Werten für E_a und D_0 aus dem Hochtemperaturbereich, etwa $4 \mu s$ ergibt. Die mit Gl. (26) berechneten Verweilzeiten aus den experimentell ermittelten Werten von λ sind aber in der Grössenordnung 1 bis 10 ps. Diese Tatsache kann nur verstanden werden, wenn angenommen wird, dass es sich in den beiden Temperaturbereichen nicht um denselben Diffusionsprozess handelt. Bei tiefen Temperaturen ist die Besetzungswahrscheinlichkeit von angeregten Schwingungszuständen im Potentialtopf klein. Das Myon befindet sich vorwiegend im Grundzustand. Als möglicher Diffusionsprozess kommt deshalb nur ein Tunnelprozess zwischen zwei Grundzustandsniveaus in Frage.

In der Abb. 37 ist der durch Phononen induzierte Tunnelprozess, wie er von Flynn und Stoneham⁵⁹ diskutiert wurde, schematisch dargestellt. Das Myon ist an einem Zwischengitterplatz lokalisiert. Durch die Verzerrung des Gitters in seiner Umgebung ist sein Grundzustand gegenüber demjenigen des benachbarten Gitterplatzes abgesenkt (Polaroneffekt). Das Potential fluktuiert aufgrund von thermisch angeregten Phononen. Diese führen den Zustand herbei, wo beide Grundzustandsniveaus auf dieselbe Höhe zu liegen kommen. Die Tunnelwahrscheinlichkeit ist in dieser Konfiguration sehr gross. Nach dem Tunnelprozess relaxiert das Gitter um das Myon am neuen Zwischengitterplatz.

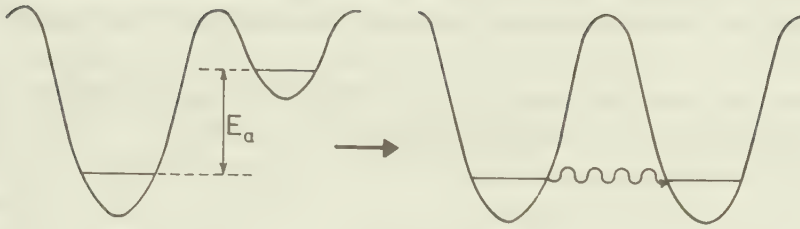


Abb. 37: Thermisch aktivierter Tunnelprozess. Durch die Lokalisation des Myons am Zwischengitterplatz links ist das Potential gegenüber dem Nachbarplatz um die Energie E_a abgesenkt. Damit ein Tunnelprozess stattfinden kann, müssen die beiden Grundzustandsniveaus durch Fluktuationen des Gitterpotentials auf dieselbe Höhe gebracht werden.

Die Sprungrate für einen solchen Prozess ist durch folgenden Ausdruck gegeben⁵⁹:

$$(30) \quad \nu = \frac{J^2}{h} \left(\frac{\pi}{4 E_a k_B T} \right)^{1/2} \exp \left(- E_a / k_B T \right)$$

J ist das Tunnelmatrizelement und E_a die Energie, die notwendig ist, um die beiden Grundzustandsniveaus auf dieselbe Höhe zu bringen. k_B ist die Boltzmannkonstante und h die Planck'sche Konstante. Mit den in der Tabelle VI angegebenen Vorfaktoren kann im Temperaturbereich $80 < T < 300$ K das Tunnelmatrizelement J abgeschätzt werden. Es ergibt sich für J ein Wert von 2 meV. Aus Wasserstoffdiffusionsmessungen in Eisen sind keine Werte für J bekannt. In Niobium, das ebenfalls ein bcc-Gitter hat, wurde ein flacher Zweig für die Diffusionskonstante beobachtet⁵⁷. In diesem Temperaturbereich wurde für das Tunnelmatrizelement mit Gl. (30) ein Wert von $J = 5$ meV erhalten⁶⁰. Die Größenordnung stimmt mit dem für Eisen erhaltenen Wert überein.

Mit den vorhandenen Daten ist es nicht möglich, weitere Details über die beteiligten Diffusionsprozesse anzugeben. Es steht aber fest, dass vor allem bei tiefen Temperaturen die Diffusion stark durch Verunreinigungen in der Probe beeinflusst wird. Für weitere Messungen werden deshalb hochreine Einkristallproben benötigt.

3.3.3. Folgerungen

- a) Im gesamten untersuchten Temperaturbereich wurde in Eisen nur eine Präzessionsfrequenz beobachtet. Diese folgt als Funktion der Temperatur ungefähr der makroskopischen Magnetisierungskurve. Unterhalb 200 K werden Abweichungen zwischen Messungen an verschiedenen reinen Proben beobachtet.
- b) Aus der Feldabhängigkeit von B_{μ} wurde das Vorzeichen bestimmt. B_{μ} ist negativ d.h. antiparallel zur Magnetisierung orientiert.
- c) Das Hyperfeinfeld bei 0 K ist $B_{hf} = -11.2 \pm 0.2$ kG. Als Funktion der Temperatur werden geringe Abweichungen von der Magnetisierungskurve beobachtet. Dies gilt besonders für die Messungen im Einkristall unterhalb 200 K.
- d) Da nur eine Frequenz beobachtet wird, muss das Myon rasch über die Zwischengitterplätze diffundieren, um die stark unterschiedlichen Dipolfelder zu Null auszumitteln.
- e) Oberhalb 600 K erfolgt die Diffusion vermutlich durch Ueberspringen der Potentialbarriere. Die Aktivierungsenergie und die Diffusionskonstante stimmen in diesem Temperaturbereich ungefähr mit den Werten für die Wasserstoffdiffusion überein.
- f) Die bei 80 K gemessene Sprungrate ist um fünf bis sechs Zehnerpotenzen grösser als die mit den Parametern E_a und D_0 aus dem Hochtemperaturbereich berechnete Sprungrate bei derselben Temperatur.

Dies kann nur verstanden werden, wenn bei tiefen Temperaturen die Diffusion durch Tunnelprozesse erfolgt.

g) Die bei tiefen Temperaturen beobachteten Abweichungen zwischen μ SR-Messungen mit Proben unterschiedlicher Reinheit deuten darauf hin, dass der Diffusionsprozess (Tunneln) durch Verunreinigungen stark beeinflusst wird. Um die beteiligten Diffusionsprozesse in diesem interessanten Temperaturbereich detailliert untersuchen zu können, müssen hochreine Einkristalle verwendet werden.

3.4. Nickel

Das Uebergangsmetall Nickel kristallisiert im gesamten untersuchten Temperaturbereich in der kubisch flächenzentrierten fcc-Struktur. Eine Elementarzelle dieses Gitters mit den möglichen Aufenthaltsorten für das Myon ist in der Abb. 38 dargestellt. An den Gitterplätzen sind die magnetischen Momente der 3d-Elektronen lokalisiert. Sie sind für den Ferromagnetismus in diesem Metall verantwortlich. Unterhalb der Curietemperatur $T_c = 631$ K ist die Temperaturabhängigkeit dieser Momente durch $|\vec{\mu}| = 0.616 \mu_B (M_S(T)/M_S(0))$ gegeben¹⁶. Die Sättigungsmagnetisierung bei 0 K beträgt 528 G. Die leichte Richtung der Magnetisierung ist parallel zur Raumdiagonalen der Elementarzelle orientiert.

Die vor diesen Messungen durchgeführten Experimente in Nickel waren zum Teil unvollständig^{49, 50, 61, 62, 63}. Vorallem konnte über das dynamische Verhalten des Myons im Nickelgitter nichts ausgesagt werden, weil die Relaxationszeit bzw. die Relaxationsrate über den untersuchten Temperaturbereich innerhalb des Fehlers konstant war.

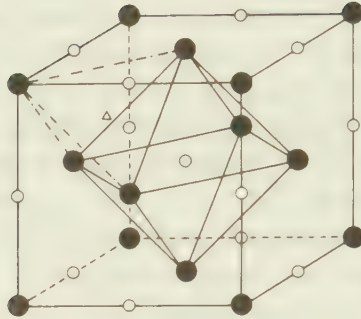


Abb. 38: Einheitszelle des fcc-Gitters. Die schwarzen Punkte markieren die Lage der Nickelatome. Als mögliche Aufenthaltsorte des μ^+ kommen der oktaedrische (o) und der tetraedrische (Δ) Zwischengitterplatz in Frage.

3.4.1. Experimentelle Ergebnisse

Die Experimente wurden mit einer Einkristallkugel (Durchmesser 22 mm) und mit einem polykristallinen Target durchgeführt. Letzteres bestand aus 30 g hochreinen polykristallinen Folien ($20 \times 20 \times 0,05 \text{ mm}^3$). Unterhalb 300 K wurden auch Experimente mit protonenbestrahlten Folien gemacht. Folgende Verunreinigungen sind in der polykristallinen Probe (Materials Research Company) enthalten: Kohlenstoff (20 ppm), Stickstoff ($< 5 \text{ ppm}$), Eisen (22 ppm), Silizium (14 ppm). Andere Verunreinigungen kommen in Konzentrationen vor die kleiner als 1.6 ppm sind. Vor den Messungen wurden die Folien in Wasserstoff bei einer Temperatur von 1200°C ausgeglüht. Die Reinheit der Einkristallkugel ist nicht bekannt. Sie wurde durch Elektroerosion aus dem von Patterson⁶² verwendeten Kristall geschnitten.

In der Abb. 39 ist die Temperaturabhängigkeit der Frequenz und des berechneten lokalen Magnetfeldes B_μ dargestellt. Die Ergebnisse im ein-

kristallinen ($\square$) und polykristallinen ($\bullet$) Material stimmen gut überein. Messungen des lokalen Feldes B_μ an bestrahlten Folien unterhalb Zimmertemperatur unterscheiden sich in der Frequenz nicht von denen in unbestrahlten Folien. Die gestrichelte Kurve stellt den Verlauf der makroskopischen Magnetisierung normiert auf die Frequenz bei 0 K dar.

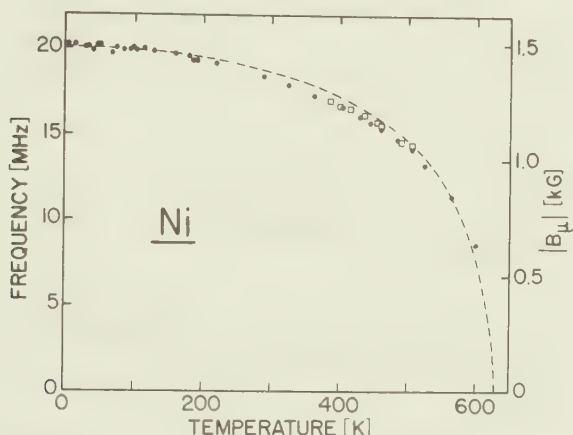


Abb. 39: Temperaturabhängigkeit der Myonspinpräzessionsfrequenz in polykristallinem ($\bullet$) und einkristallinem ($\square$) Nickel. Gestrichelt ist die Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung normiert auf den Wert der Frequenz bei $T = 0$ K eingezeichnet.

In der Abb. 40 ist der Temperaturverlauf der Relaxationszeit dargestellt. Gegenüber den früheren Messungen^{49, 50, 61, 62, 63} wird oberhalb etwa 350 K eine Zunahme der Relaxationszeit mit zunehmender Temperatur beobachtet. Unterhalb Zimmertemperatur ist T_2 sowohl für die unbestrahlte als auch die bestrahlte Folie unabhängig von der Temperatur. Der Mittelwert der Relaxationszeit aus Messungen an der unbestrahlten Folie bei Zimmertemperatur ist $T_2 = (1.020 \pm 0.035) \mu\text{s}$. Das Verhältnis der beiden Mittelwerte ist $2.51 \pm .23$. Mit diesem Wert wurden die Relaxationsdaten unterhalb Zimmertemperatur aus den Messungen der bestrahlten Probe korrigiert und an den Wert der unbestrahlten Probe bei Zimmertemperatur angepasst. In Abb. 40 sind unterhalb Zimmertemperatur die

so korrigierten Daten eingetragen. Da der Fehler aus der Mittelwertbildung mitberücksichtigt ist, stimmen die eingezeichneten Fehler bei diesen Punkten nicht mit dem statistischen Fehler der Messpunkte überein.

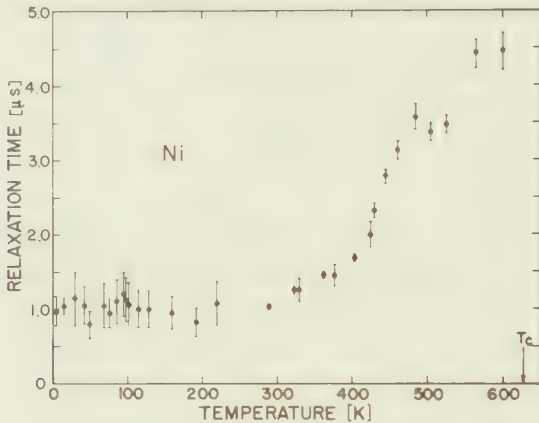


Abb. 40: Temperaturabhängigkeit der Relaxationszeit in polykristallinem Nickel. Die Werte unterhalb Zimmertemperatur stammen zum Teil aus Messungen an Protonen bestrahlten polykristallinen Folien. Sie wurden an den Wert T_2 von unbestrahlten Folien bei Zimmertemperatur angepasst (siehe Text). Innerhalb der Fehler wurde unterhalb Zimmertemperatur keine Temperaturabhängigkeit von T_2 beobachtet. Oberhalb 300 K setzt "Motional-Narrowing" ein.

In der Abb. 41 ist die Asymmetrie als Funktion der Temperatur dargestellt. Unterhalb Zimmertemperatur wurde die Asymmetrie aus den Messungen an der bestrahlten Probe ebenfalls gemittelt ($\bar{A}_b = (0.022 \pm 0.006)$) und auf die gemittelte Asymmetrie der unbestrahlten Probe bei Zimmertemperatur ($\bar{A}_u = (0.066 \pm 0.02)$) normiert. Der Normierungsfaktor beträgt $(3. \pm 1.1)$. Auch hier entsprechen die Fehler der eingezeichneten Punkte nicht den statistischen Fehlern, da der Fehler aus der Mittelwertbildung mitberücksichtigt ist. Die so korrigierte Asymmetrie ist im untersuchten Temperaturbereich unabhängig von der Temperatur.

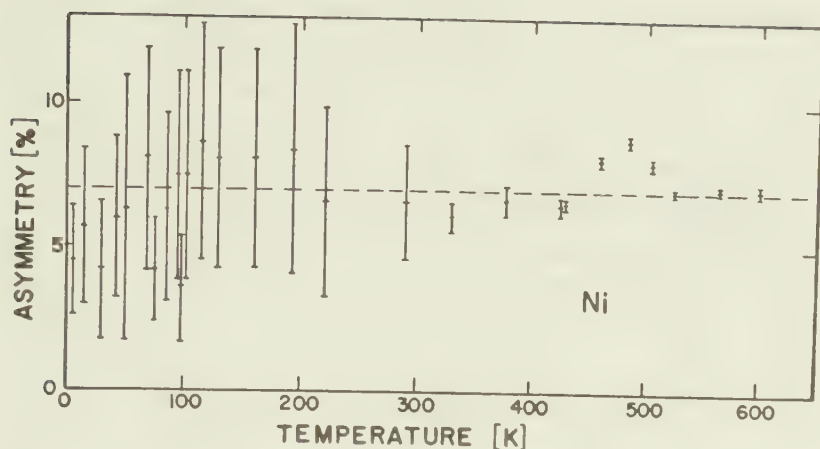


Abb. 41: Temperaturabhängigkeit der Asymmetrie in polykristallinem Nickel. Die Werte unterhalb Zimmertemperatur (bestrahlte Probe) wurden an den Wert der unbestrahlten Probe bei Zimmertemperatur angepasst.

Bei Zimmertemperatur wurde mit der Einkristallkugel das lokale Feld B_μ als Funktion eines extern angelegten Magnetfeldes gemessen. Die Ergebnisse dieser Messungen sind in Abb. 42 dargestellt.

Unterhalb des Sättigungsfeldes $B_s = (2050 \pm 13) \text{ G}$ ist B_μ konstant. Oberhalb B_s nimmt B_μ linear mit B_{ext} zu. In diesem Feldbereich ergibt eine Anpassung von B_μ an eine Gerade eine Steigung von 1.013. Ohne die Knight-Verschiebung B_μ^{64} müsste die Steigung eins sein. Die Genauigkeit mit der das externe Feld bestimmt wurde, lässt aber keinen Schluss auf die Grösse der Knight-Verschiebung zu. Ohne externes Feld beträgt das lokale Feld am Myonort $B_\mu = 1357 \text{ G}$. Dieses Ergebnis stimmt mit den früher durchgeführten Messungen überein.

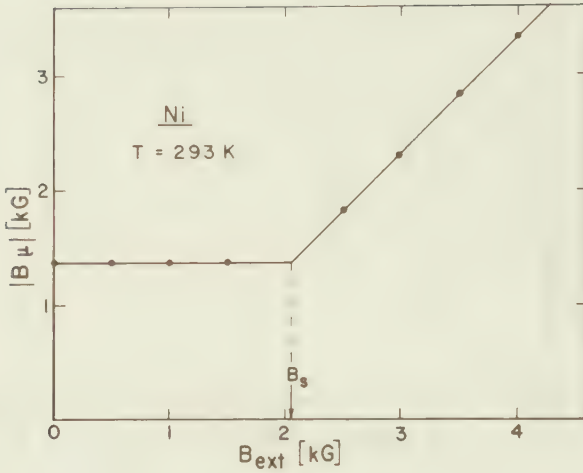


Abb. 42: Abhängigkeit des lokalen Feldes B_μ am Myonort von einem extern angelegten Magnetfeld B_{ext} . Die Messungen wurden mit der Einkristallkugel bei Zimmertemperatur durchgeführt. $B_s = 2050 \pm 13$ G ist das Sättigungsfeld das notwendig ist, um die Probe vollständig zu magnetisieren.

3.4.2. Diskussion der Messergebnisse

a) Hyperfeinfeld

Wie für Eisen kann aus der Feldabhängigkeit von B_μ das Vorzeichen bestimmt werden. Da oberhalb des Sättigungsfeldes das lokale Feld linear mit dem externen Feld zunimmt, ist B_μ parallel zur Magnetisierung orientiert und das Vorzeichen deshalb positiv. Der bei Zimmertemperatur für das Sättigungsfeld erhaltene Wert von 2050 ± 13 G ist in guter Übereinstimmung mit dem für eine Kugel erwarteten Wert von 2048 G.

Das Dipolfeld der lokalisierten magnetischen Momente der 3d-Elektronen ist sowohl am Oktaeder- als auch am Tetraederplatz wegen der Symme-

trie dieser Zwischengitterplätze null. Ohne externes Feld ist B_{μ} durch das Lorentzfeld B_L und das Hyperfeinfeld B_{hf} definiert. Der Temperaturverlauf der Sättigungsmagnetisierung ist durch $M(T) = M_0 (\delta(T)/\delta(0)) (\varrho(T)/\varrho(0))$ gegeben wo $M_0 = 528 \text{ G}$, δ die Sättigungsmagnetisierung pro Gramm und ϱ die Dichte ist. Die Temperaturabhängigkeit der Dichte ϱ wurde aus der Temperaturabhängigkeit der Gitterkonstante a berechnet. Für die relative Änderung von a als Funktion der Temperatur erhält man durch eine Anpassung an vorhandenen Daten⁵² folgende Entwicklung:

$$(31) \quad \begin{aligned} 0 < T < 293 \text{ K} : \quad \frac{\Delta a}{a} &= \sum_{k=0}^6 b_k T^k \\ 293 < T < 895 \text{ K} : \quad \frac{\Delta a}{a} &= \sum_{k=1}^3 c_k (T-293)^k \end{aligned}$$

Die Koeffizienten b_k und c_k sind in der folgenden Tabelle VII zusammengefasst.

Tabelle VII: Koeffizienten zur Berechnung der Temperaturabhängigkeit von $\frac{\Delta a}{a}$ (Gl. 31).

k	b_k	c_k
0	$-2.3220017 \times 10^{-1}$	1.362×10^{-3} 4.544×10^{-7} -1.806×10^{-10}
1	3.049666×10^{-4}	
2	-1.4254×10^{-5}	
3	2.622×10^{-7}	
4	1.70×10^{-9}	
5	5.23×10^{-12}	
6	-6.04×10^{-15}	

Das aus dem gemessenen Feld $\vec{B}_{\mu}$ berechnete Hyperfeinfeld $\vec{B}_{hf} = (\vec{B}_{\mu} - \vec{B}_L)$ ist als Funktion der Temperatur in der Abb. 43 dargestellt.

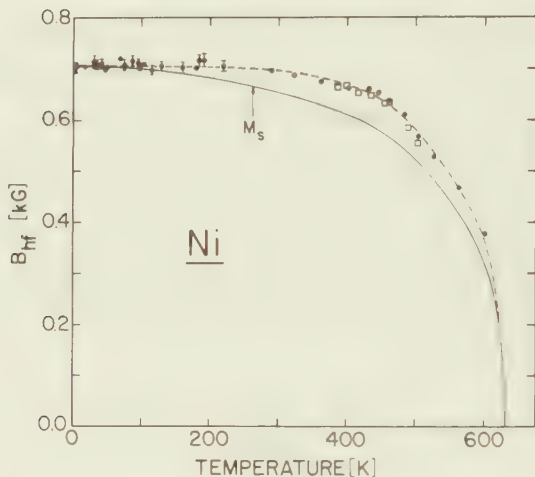


Abb. 43: Temperaturabhängigkeit des Hyperfeinfeldes in polykristallinem (●) und einkristallinem (□) Nickel. Die gestrichelte Linie verbindet lediglich die Messpunkte. Die ausgezogene Kurve entspricht der auf $B_{hf}(T = 0 \text{ K})$ normierten Sättigungsmagnetisierung.

Der Temperaturverlauf der Sättigungsmagnetisierung normiert auf den Wert des Hyperfeinfeldes B_{hf} bei $T = 0 \text{ K}$ ist durch die ausgezogene Kurve dargestellt. Das Hyperfeinfeld nimmt mit zunehmender Temperatur weniger stark ab als die Magnetisierung. In Messungen bis Zimmertemperatur wurde von Nagamine et al.⁶³ dasselbe Verhalten beobachtet. Durch Extrapolation der Werte bei tiefen Temperaturen zu $T = 0 \text{ K}$ erhält man für das Hyperfeinfeld einen Wert von $B_{hf} = -707 \text{ G}$. Werden die Werte unterhalb 100 K gemittelt (die Magnetisierung ändert sich in diesem Bereich nur um 0.75%) erhält man für das Hyperfeinfeld einen Wert von $B_{hf} = -(710 \pm 5) \text{ G}$.

Das gemessene Hyperfeinfeld kann wiederum mit Neutronstreudaten⁶⁵ verglichen werden. Die so gemessene Magnetisierungsdichte am oktaedrischen Zwischengitterplatz in Nickel ist $M = 0.0085 \mu_B/\text{\AA}^3$ und praktisch

konstant über ein grösseres Gebiet um diesen Platz. Diese Magnetisierungsichte entspricht einer lokalen Magnetisierung von -0.079 kG . Das nach Gl. (12) daraus berechnete Hyperfeinfeld in Nickel beträgt $B_{\text{hf}} = -0.662 \text{ kG}$. Die Uebereinstimmung mit den μSR -Daten ist erstaunlich, da durch die Anwesenheit des Myons sowohl die Ladungs- als auch die Spindichte der Elektronen wesentlich beeinflusst werden sollte. Für die negative interstitielle Spindichte können sowohl polarisierte 4s- als auch 3d-Elektronen verantwortlich sein. Bestehende Theorien^{43,66}, welche nur 4s-Elektronen berücksichtigen und den Beitrag von 3d-Elektronen vernachlässigen, sind deshalb fragwürdig. Petzinger⁶⁷ macht die d-Band Polarisation für das negative Hyperfeinfeld verantwortlich, während die 4s-Elektronen praktisch unpolarisiert nur zur Abschirmung der Myonladung beitragen. Im reinen Nickel ist das Majoritäts-d-Band voll besetzt während im Minoritätsband 0.6 Elektronen fehlen. Die Wellenfunktionen der letzteren sind mehr ausgebreitet als diejenigen des Minoritätsbandes und können deshalb mit dem Myon am Oktaederplatz überlappen. Damit kann die negative Magnetisierung in diesem Gebiet erklärt werden. Petzinger führt auch Argumente an, welche die gegenüber der Magnetisierung schwächere Abnahme des Magnetfeldes erklären. Indem sich das Minoritätsband mit steigender Temperatur zu füllen beginnt, kann der Abnahme der Magnetisierung entgegengewirkt werden.

b) Diffusion

In der Abb. 40 ist der Temperaturverlauf der Relaxationszeit T_2 in polykristallinem Nickel dargestellt. Zwei Bereiche können unterschieden werden. Unterhalb 300 K ist T_2 konstant. Die Depolarisation wird in diesem Bereich durch ein inhomogenes Magnetfeld erzeugt. Die dieser Relaxationszeit entsprechende Feldverschmierung ΔB beträgt etwa 20 G . Sie wird verursacht durch nichtmagnetische Verunreinigungen oder Gitterdefekte (Fehlstellen). Die Messungen mit protonenbestrahlten Folien (Gesamtdosis von $2 \cdot 10^{15} \text{ Protonen/cm}^2$) haben den Einfluss von Defekten

auf die Relaxationszeit bestätigt. Durch Bestrahlung erzeugte Defekte mit einer Konzentration von 50 ppm verursachen eine Erniedrigung von T_2 um etwa einen Faktor zwei. Oberhalb 300 K nimmt T_2 mit zunehmender Temperatur zu. Durch rasche Diffusion werden die langreichweitigen Störungen des lokalen Feldes B_μ ausgemittelt ("Motional-Narrowing"). In diesem Bereich wurden die Zeitspektren zusätzlich mit der Relaxationsfunktion Gl. (32) angepasst⁵⁶.

$$(32) \quad P(t) = P_0 \exp \left[-2 \epsilon^2 \tau_c^2 \left\{ \exp(-t/\tau_c) + t/\tau_c - 1 \right\} \right]$$

Unter der Annahme, dass ϵ konstant ($\epsilon = 0.81 \mu s^{-1}$) und $P_0 = 1$ ist, kann die Korrelationszeit τ_c durch Anpassung von Gl. (32) an das Zeitspektrum bestimmt werden. Die Temperaturabhängigkeit von $1/\tau_c$ ist in Abb. 44 dargestellt.

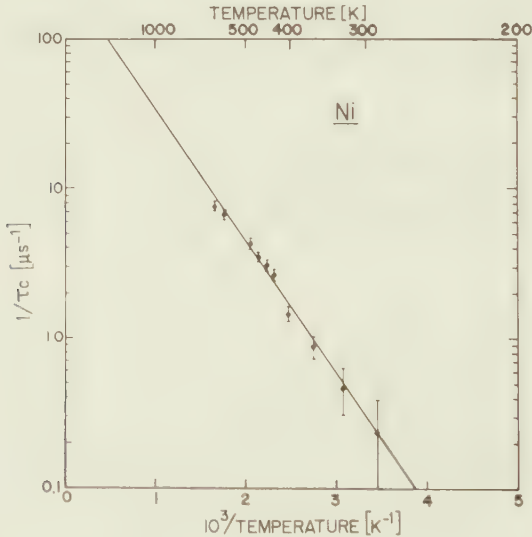


Abb. 44: Temperaturabhängigkeit der inversen Korrelationszeit. Die Gerade durch die Messpunkte wurde durch eine Anpassung an ein Arrheniusgesetz erhalten.

Die Korrelationszeit $1/\tau_c$ folgt einem Arrheniusgesetz

$1/\tau_c = (1/\tau_c^0) \exp(-E_a/kT)$. Die Daten in Abb. 45 werden durch $E_a = 173 \pm 7$ meV und $1/\tau_c^0 = 265 \pm 1 \mu s^{-1}$. Wird die Temperaturabhängigkeit von δ , welche proportional $M(T/M(0))$ ist, korrekt berücksichtigt, ergibt sich für die Aktivierungsenergie $E_a = 160 \pm 5$ meV und für den Vorfaktor $1/\tau_c^0 = 111 \pm 1 \mu s^{-1}$.

Aus dem Experiment von Camani et al.³ folgt, dass das Myon bei tiefen Temperaturen (20 - 80 K) in Kupfer am oktaedrischen Zwischengitterplatz des fcc-Gitters lokalisiert ist. Wenn man die Annahme macht, dass das Myon bei höheren Temperaturen durch Sprünge zwischen benachbarten oktaedrischen Zwischengitterplätzen diffundiert, ist der Zusammenhang zwischen Diffusionskoeffizient und mittlerer Verweilzeit ($\vec{\tau}_c = \tau_c$) durch folgenden Ausdruck gegeben⁵⁶:

$$(33) \quad D = \frac{a^2}{12 \tau_c}$$

Nimmt man weiter an, dass das Myon im fcc-Gitter des Nickels über denselben Zwischengitterplatz diffundiert, ist mit $a = 3.52394 \text{ \AA}$ und $1/\tau_c^0 = 111 \mu s^{-1}$ die Diffusionskonstante $D_0 = 1.15 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$. Da der mit Kupfer vergleichsweise hohe Wert von δ in Nickel bei $T = 300 \text{ K}$ ($\delta_{Cu} < 0.2 \mu s^{-1}$) durch statische Feldinhomogenitäten verursacht wird, muss D_0 korrigiert werden. Die durch Verunreinigungen erzeugte Feldinhomogenität wird erst ausgemittelt wenn $\langle \omega^2 \rangle \tau_c \leq 1$ ist. $\langle \omega^2 \rangle$ ist das 2. Moment der Feldverteilung und ist, falls die Konzentration c der Verunreinigungen nicht zu klein ist, proportional c ⁵⁵. Damit die obige Bedingung bei Anwesenheit von Verunreinigungen erfüllt werden kann, muss die Korrelationszeit τ_c um denselben Faktor kleiner werden. Für die so korrigierte Diffusionskonstante erhält man, mit der oben angegebenen Konzentration von nichtmagnetischen Verunreinigungen, einen Wert von $D_0 = 2.9 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{s}$.

Die für die Diffusion in Nickel massgebenden Werte der Aktivierungsenergie E_a und des Vorfaktors D_0 sind sowohl für das Myon als auch den Wasserstoff in Tabelle VIII zusammengefasst.

Tabelle VIII: Aktivierungsenergie und Diffusionskonstante für die Myon- und Wasserstoffdiffusion in Nickel für $T > 300$ K.

	Myon	Wasserstoff
E_a (meV)	160 ± 5	408 meV
D_0 (cm ² /s)	$2.9 \cdot 10^{-4}$	$4.8 \cdot 10^{-3}$

Im Rahmen der klassischen Ratentheorie ist die Aktivierungsenergie unabhängig von der Isotopenmasse, hingegen hängt der Vorfaktor von der Masse des diffundierenden Teilchens ab⁵⁸. Messungen von Katz sowie Eichenauer et al.⁵⁷ mit verschiedenen Isotopen (H, D, T) in Nickel haben ergeben, dass $D_0^H : D_0^D : D_0^T = 1 : (\sqrt{2})^{-1} : (\sqrt{3})^{-1}$ und $E_a^H > E_a^D > E_a^T$ ist. Diese Messungen ergeben erstens, dass Tritium unterhalb einer bestimmten Temperatur schneller als Wasserstoff diffundiert. Zweitens zeigen die Vorfaktoren ungefähr die klassische $M^{-1/2}$ -Abhängigkeit. Die Ergebnisse aus den vorliegenden μ SR-Messungen lassen sich im Rahmen der klassischen Diffusionstheorie nicht erklären.

Quantenmechanische Argumente würden eine geringere Aktivierungsenergie und eine grössere Diffusionskonstante für das Myon erwarten lassen⁵⁸.

3.4.3. Folgerungen

a) Im allgemeinen folgt B_μ als Funktion der Temperatur der Magnetisierungskurve. Die Ursache für geringe Abweichungen, welche sich auf den Temperaturverlauf des Hyperfeinfeldes auswirken, wurden diskutiert. Bei $T = 0$ K ist $B_\mu = 1.5$ kG.

b) Aus der externen Feldabhängigkeit von B_μ ergibt sich, dass das lokale Feld positiv und damit parallel zur Domänenmagnetisierung orientiert ist.

- c) Das Hyperfeinfeld ist negativ und hat bei $T = 0 \text{ K}$ einen Wert von $-0.707 \pm .010 \text{ kG}$. Im Vergleich zu der bei $T = 0 \text{ K}$ normierten Magnetisierungskurve weicht das Hyperfeinfeld vom Temperaturverlauf der Magnetisierung ab. Die Abweichung gegenüber der Magnetisierungskurve ist, anders wie für Kobalt, Gadolinium und Eisen, stets positiv.
- d) Durch die Anpassung von Gl. (32) an die Zeitspektren wurde die Korrelationszeit als Funktion der Temperatur bestimmt. Unter der Annahme, dass diese einem Arrheniusgesetz folgt, wurde die Diffusionskonstante $D_0 = 2.9 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{s}$ und die Aktivierungsenergie $E_a = 160 \pm 5 \text{ meV}$ bestimmt. E_a ist um einen Faktor 2.6 und D_0 um einen Faktor 17 kleiner als die entsprechenden Werte aus Wasserstoffdiffusionsmessungen⁵⁷.

IV. ZUSAMMENFASSUNG

In der vorliegenden Arbeit wurde mit der Myon-Spin-Rotations-Methode das Verhalten des positiven Myons in den ferromagnetischen Metallen Kobalt, Gadolinium, Eisen und Nickel untersucht.

Für alle Metalle wurde die Temperaturabhängigkeit des lokalen Magnetfeldes B_μ am Myonort gemessen. Das Vorzeichen von B_μ wurde in Eisen und Nickel durch die Messung der Feldabhängigkeit von B_μ direkt bestimmt. In den beiden anderen Fällen wurde es durch theoretische Ueberlegungen erhalten. Am Beispiel der hcp-Metalle Kobalt und Gadolinium wurde gezeigt, dass das Dipolfeld der Gitterionen nicht vernachlässigt werden darf. In Temperaturbereichen, wo sich die leichte Richtung der Magnetisierung ändert, wird der Temperaturverlauf von B_μ wesentlich durch das Dipolfeld beeinflusst. Aus dem gemessenen Feld B_μ und dem berechneten Dipolfeld wurde das Hyperfeinfeld B_{hf} , welches durch polarisierte Leitungselektronen am Myonort erzeugt wird, bestimmt. Die erhaltenen Werte sind tabellarisch im Anhang B zusammengestellt. Der Temperaturverlauf von B_{hf} folgt ungefähr dem Verlauf der makroskopischen Magnetisierung. Die Ursachen für geringe Abweichungen sind noch nicht geklärt und müssen theoretisch weiter untersucht werden. Ebenfalls nicht verstanden sind die absoluten Beträge des Hyperfeinfeldes. Theorien welche eine Erhöhung der Spindichte infolge der Abschirmung der Myonladung berücksichtigen, sind nicht in der Lage, die experimentellen Ergebnisse konsistent zu erklären. Das negative Vorzeichen von B_{hf} in allen untersuchten Metallen ist in Uebereinstimmung mit existierenden Theorien und Neutronstremessungen.

Das Dipolfeld der lokalisierten d- bzw. f-Elektronen am Myonort hängt von deren Orientierung bezüglich dem Kristallgitter ab. Weil sich das Dipolfeld und das Hyperfeinfeld bei einer Drehung der Magnetisierungsrichtung nicht gleich transformieren, ist es möglich, den Aufenthaltsort des Myons in Kobalt und Gadolinium zu bestimmen. In beiden Metallen

ist der oktaedrische Zwischengitterplatz der Aufenthaltsort des positiven Myons.

In Gadolinium konnte mit den μ SR-Daten der Winkel zwischen Magnetisierungsrichtung und hexagonaler c-Achse als Funktion der Temperatur bestimmt werden. Diese Temperaturabhängigkeit stimmt mit den Ergebnissen aus Neutronstreuexperimenten überein.

Die Abhängigkeit des lokalen Magnetfeldes B_{μ} von einem extern angelegten Magnetfeld in Kobalt wurde berechnet. Durch Anpassung an die experimentellen Daten wurde die Anisotropiekonstante K_1 bestimmt. Der Wert von K_1 stimmt gut mit dem gemittelten Wert aus anderen Messungen überein.

In Eisen wurde über den gesamten Temperaturbereich nur eine Frequenz beobachtet. Im kubisch raumzentrierten Gitter existieren kristallographisch äquivalente Zwischengitterplätze mit verschiedenen Dipolfeldern. Die Beobachtung einer einzigen Frequenz wird so interpretiert, dass das Myon rasch über diese magnetisch inäquivalenten Zwischengitterplätze diffundiert und die Dipolfelder zu Null mittelt. Die Relaxationsrate zeigt eine starke Temperaturabhängigkeit. Diese wird durch die Beweglichkeit des Myons im Kristallgitter bestimmt. In zwei Temperaturbereichen wurde ein Arrheniusgesetz an die Relaxationsdaten angepasst. Die daraus bestimmten Aktivierungsenergien und Diffusionskonstanten deuten darauf hin, dass in den zwei Temperaturbereichen unterschiedliche Diffusionsmechanismen vorhanden sind. Es wird angenommen, dass bei höheren Temperaturen die Diffusion des Myons durch Sprünge über die Potentialbarriere erfolgt. Die Aktivierungsenergie stimmt innerhalb des Fehlers mit der aus Wasserstoffdiffusionsexperimenten erhaltenen Aktivierungsenergie überein, wenn angenommen wird, dass die Sprünge über tetraedrische Zwischengitterplätze erfolgen. Bei tiefen Temperaturen ist die Besetzungswahrscheinlichkeit für angeregte Schwingungszustände im Potentialtopf gering. Die Tatsache, dass die Dipolfelder auch bei diesen Temperaturen zu Null gemittelt werden, kann nur verstanden werden,

wenn man quantenmechanisches Tunneln vom Grundzustand zum Grundzustand des Nachbarplatzes durch die Potentialbarriere annimmt. Durch Relaxation des Gitters in der Umgebung des Myons wird der Grundzustand gegenüber den benachbarten Plätzen abgesenkt (Polaroneffekt). Ein Diffusionsprozess zum Nachbarplatz erfolgt nur, wenn die Grundzustandsenergien durch thermische Aktivierung auf dieselbe Höhe gebracht werden. Die bei tiefen Temperaturen angepasste geringe Aktivierungsenergie stellt die für diesen Prozess benötigte Energie dar. Die an die Theorie von Flynn und Stoneham angepassten Werte für das Tunnelmatrixelement J und die Aktivierungsenergie E_a ergeben vernünftige und im Rahmen der Theorie erwartete Werte. Der Grund für das Verschwinden des Präzessionssignals bei tiefen Temperaturen ist nicht geklärt, doch dürften Gitterverzerrungen, verursacht durch Verunreinigungen im Kristall dabei eine wesentliche Rolle spielen.

In Nickel ist die Relaxationsrate zwischen 4 K und 350 K unabhängig von der Temperatur. Oberhalb 350 K wird motional narrowing beobachtet. Die in diesem Temperaturbereich angepasste Aktivierungsenergie $E_a = 160 \pm 5$ meV ist um einen Faktor 2,6 kleiner als der Wert für die Diffusion von Wasserstoff in Nickel. Die relativ hohe Relaxationsrate unterhalb 350 K dürfte ebenfalls von Verunreinigungen, die das lokale Feld B_μ langreichweitig stören, verursacht sein.

Allgemein kann festgestellt werden, dass über die magnetische Wechselwirkung des Myons mit der Umgebung in diesen Ferromagneten ein recht konsistentes Bild erhalten wurde. Erstmals konnten mit dieser Methode Dipolfelder von lokalisierten d- bzw. f-Elektronen der Gitterionen gemessen werden. Die Hyperfeinfelder wurden als Funktion der Temperatur in der ferromagnetischen Phase untersucht. Durch polarisierte Leitungselektronen am Myonort erzeugt, geben sie eine wichtige Information über die Art der Abschirmung der Myonladung. Die Diffusion des positiven Myons konnte vorallem in Eisen wegen den speziellen Eigenschaften des kubisch raumzentrierten Gitters untersucht werden. Es wurde

gezeigt, dass verschiedene Diffusionsmechanismen für die Beweglichkeit des Myons verantwortlich sind.

ANHANG A

Myonium

Das Myoniumatom ist ein gebundener Zustand zwischen einem positiven Myon und einem Elektron. Das μ^+ übernimmt die Rolle des Protons im Wasserstoffatom. Der Bohrradius und die Ionisationsenergie stimmen innerhalb 0,5% mit den Werten des Wasserstoffatoms überein.

Ohne externes Magnetfeld addieren sich die Spins von Myon und Elektron im Grundzustand zu einem Gesamtspin $F = 1$ (Triplettzustand) oder $F = 0$ (Singulettzustand). Die Hyperfeinaufspaltung beträgt 4463 MHz. In einem äusseren Magnetfeld ist der Hamiltonoperator

$$(A1) \quad H_{Mu} = A \vec{S} \vec{I} + g_{\mu} \mu_{\mu} \vec{I} \vec{B} + g_e \mu_e \vec{S} \vec{B}.$$

$\vec{I}$ und $\vec{S}$ sind die Spinoperatoren von Myon und Elektron. μ_{μ} ist das magnetische Moment des Myons und μ_e das Bohrmagneton. g_e und g_{μ} sind die g-Faktoren des Elektrons und des Myons. A ist die Hyperfeinkonstante und $\vec{B}$ das extern angelegte Magnetfeld parallel zur z-Richtung. Die Eigenwerte von Gl. (A1) sind gegeben durch

$$(A2) \quad \begin{aligned} E_1/h &= v_1 = \frac{1}{4} A/h + \Gamma B/2 - \gamma_{\mu} B \\ E_3/h &= v_3 = \frac{1}{4} A/h - \Gamma B/2 + \gamma_{\mu} B \\ E_{2,4}/h &= v_{2,4} = -\frac{1}{4} A/h \pm \frac{1}{2} \sqrt{(A/h)^2 + \Gamma^2 B^2} \end{aligned}$$

mit

$$\begin{aligned} \gamma_{\mu} &= -g_{\mu} \mu_{\mu}/h = 13.55 \text{ kHz/G} \\ \Gamma &= (g_e \mu_e - g_{\mu} \mu_{\mu})/h = 2.82 \text{ MHz/G} \end{aligned}$$

Diese Energiezustände sind als Funktion des externen Magnetfeldes in Fig. A1 dargestellt.

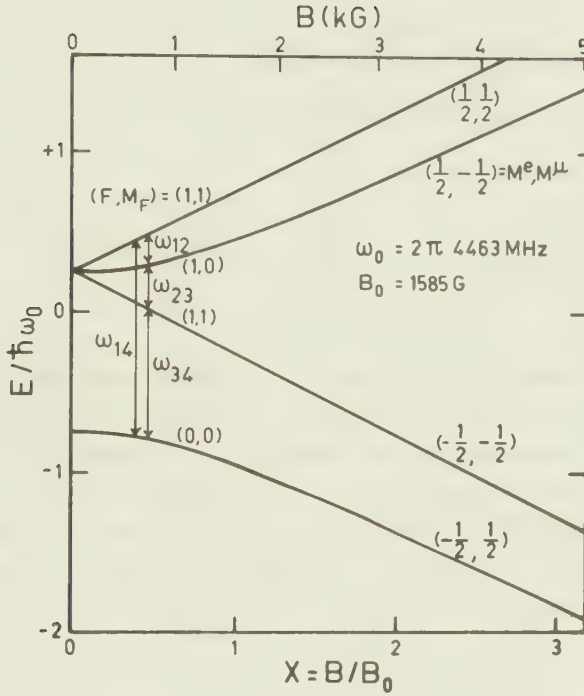


Abb. A1: Breit-Rabi-Diagramm für Myonium (nicht massstäblich).

In einem transversal zur Anfangspolarisation des Myons angelegten Magnetfeld sind vier Uebergänge erlaubt. Zwei davon (ν_{12} und ν_{23}) führen zu charakteristischen Präzessionsfrequenzen welche in Fig. 7 (Abschnitt 2.3.4.) dargestellt sind. Die Frequenzen ν_{14} und ν_{34} sind von der Größenordnung $A/\hbar = 4463 \text{ MHz}$. Sie können mit der bestehenden Apparatur nicht aufgelöst werden.

Die zeitliche Entwicklung der Myonpolarisation in einem Magnetfeld $\vec{B}$ senkrecht zur Anfangspolarisation ist durch folgenden Ausdruck gegeben⁸:

$$(A3) \quad P_{\mu}^X(t) = \frac{1}{4} [(1+\delta) \cos \omega_{12} t + (1-\delta) \cos \omega_{23} t]$$

wobei

$$(A4) \quad \begin{aligned} \omega_{12} &= 2\pi \nu_{12} = 2\pi (E_1/h - E_2/h) \\ \omega_{23} &= 2\pi \nu_{23} = 2\pi (E_2/h - E_3/h) \end{aligned}$$

und

$$(A5) \quad \delta = \frac{x}{\sqrt{1+x^2}} \quad ; \quad x = \frac{\Gamma B}{A/h}$$

ist.

Da die beiden Frequenzen ω_{12} und ω_{23} nur wenig voneinander verschieden sind, werden im Zeitspektrum charakteristische Schwebungen beobachtet. Sie wurden zuerst von Gurevich et al.⁸ entdeckt. Das in Abb. 7 dargestellte Frequenzspektrum ergibt sich durch eine Fouriertransformation des μ SR-Zeitspektrums. Mit der höchsten noch nachgewiesenen Myoniumfrequenz (545 MHz) wurde die Zeitauflösung der Apparatur bestimmt (siehe Abschnitt 2.3.4.).

Tabelle B1: Zusammenstellung der wichtigsten magnetischen Eigenschaften der in dieser Arbeit untersuchten ferromagnetischen Metalle und der erhaltenen μ SR-Ergebnisse. Alle Magnetfeldwerte sind auf $T = 0$ K extrapoliert.

Metall	Struktur	Curie-Temperatur T_c (K)	Sättigungsmagnetisierung M_s (kG)	Lokales Feld am Myonort B_μ (kG)	Hyperfeinfeld B_{hf} (kG)	Dipolfeld (berechnet) Oktaeder - platz B'_{dip} (kG) Tetraeder - platz	Myonort
Co	hcp	1404	1.415	-0.317 $\pm$ 0.010	- 6.1 $\pm$ 0.2	-0.242 +0.199	Oktaeder
Gd	hcp	293	2.010	+1.10 $\pm$ 0.05	- 6.9 $\pm$ 0.2	0.658 0.020	Oktaeder
Fe	bcc	1043	1.750	-3.67 $\pm$ 0.10	-11.1 $\pm$ 0.2	-9.25(+18.52) +2.63(-5.25)	vermutlich Tetraeder
Ni	fcc	631	0.528	+1.48 $\pm$ 0.10	-0.71 $\pm$ 0.01	0 0	?

Tabelle B2: Diffusionskonstante und Aktivierungsenergie für das positive Myon und das Proton in den untersuchten ferromagnetischen Metallen. Dort wo keine Zahlen angegeben sind, sind keine Literaturangaben vorhanden oder die Werte für das μ^+ konnten in dieser Arbeit nicht bestimmt werden. Die Werte für die Wasserstoffdiffusion wurden aus Ref. 57 entnommen.

Metall	Aufenthaltsort des Myons	Temperatur- bereich (K)	Diffusionskonstante D_o (cm^2/s)		Aktivierungsenergie E_a (meV)	
			Myon	H	Myon	H
Co	Oktaeder	215	-	-	-	500
Gd	Oktaeder	-	-	-	-	-
Fe	vermutlich Tetraeder	$80 < T < 300$	okt : $8 \cdot 10^{-5}$ tetr : $3 \cdot 10^{-6}$	-	19 ± 2	-
		$T > 600$	okt : $4 \cdot 10^{-4}$ tetr : $1 \cdot 10^{-5}$	$7 \cdot 10^{-4}$	124 ± 35	105
Ni	vermutlich Oktaeder	$T > 300$	okt : $2 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-3}$	160 ± 5	408

LITERATURVERZEICHNIS

- [1] C.D. Anderson, S.H. Neddermeyer, Phys. Rev. 51, 884 (1937)
- [2] R.L. Garwin, L.M. Lederman, M. Weinrich, Phys. Rev. 105, 1415 (1957)
- [3] M. Camani, F.N. Gyax, W. Rüegg, A. Schenck, H. Schilling, Phys. Rev. Lett. 39, 836 (1977)
- [4] K.W. Kehr, Topics in Applied Physics 28, 197 (1978) (editors: G. Atefeld und J. Völkl), Springer Verlag
- [5] Review of Particle Properties, Phys. Lett., 75 B, No 1, (1978)
- [6] G. Källen, Elementarteilchenphysik, B.I-Wissenschaftsverlag Mannheim/Wien/Zürich
- [7] V.W. Hughes, Ann. Rev. Nucl. Sci 16, 445 (1966)
- [8] I.J. Gurevich, B.A. Nikol'skii, Sov. Phys. Usp., 19, 440 (1976)
- [9] E.F. Bertant, A Delapalme, R. Pauthenet, Solid State Comm. 1, 81 (1963)
- [10] S. Müller, Ph. Dünner, N. Schmitz-Pranghe, Z. angew. Phys. 22 (5), 403 (1967)
- [11] R. Kohlhaas, Ph. Dünner, N. Schmitz-Pranghe, Z. angew. Phys 23 (4), 245 (1967)
- [12] R. Pauthenet, J. Barnier, G. Rimet, J. Phys. Soc. Japar 17, suppl. B1, 309 (1962)
- [13] J.S. Couvel, CC Hartelius, J. Phys. Chem. Solids 25, 1357 (1964)
- [14] American Institut of Physics Handbook, 5-208 (Third edition)
- [15] H.P. Meyers, W. Sucksmith, Proc. Roy. Soc. A207, 427 (1951)
- [16] J. Crangle, G.M. Goodman, Proc. Roy. Soc. Lond A321, 477 (1971)
- [17] P.P. Ewald, Ann. Phys 64, 253 (1921)
- [18] F. James, H. Roos, Computer Phys. Comm. 10, 343 (1975)
- [19] I.S. Bolgov, Ju.N. Smirnov, V.A. Finkel, Phys. Metals Mettalog. 17, 76 (1964)
- [20] P. Raghavan, M. Senba, R.S. Raghavan, Phys. Rev. Lett. 39, 1547 (1977)
- [21] T.E. Cranshaw, J. Appl. Phys. 40, 1481 (1961)
- [22] G.P. Huffmann, G.R. Dunmyre, J. Appl. Phys. 41, 1323 (1970)
- [23] V. Jaccarino, L.R. Walker, G.K. Wertheim, Phys. Rev. Lett 13, 752 (1964)

- [24] P.F. Meier, private Mitteilung
- [25] C.G. Shull, H.A. Mook, Phys. Rev. Lett. 16, 184 (1965)
- [26] R. Moon, Phys. Rev. 136, A195 (1964)
- [27] C.H. Singal, Ph. D. thesis, State University of New York at Albany (1975) (unveröffentlicht)
- [28] P. Jena, Solid State Comm. 19, 45 (1976)
- [29] P.F. Meier, Solid State Comm. 17, 987 (1975)
- [30] P. Jena, K.S. Singwi, R.M. Nieminen, Phys. Rev. 13, 17, 301 (1978)
- [31] K. Hondo, H. Matsumoto, Science Repts. Tohoku Imp. Univ. 20, 323 (1931)
- [32] W. Sucksmith, J.E. Thomson, Proc. Roy. Soc. London A225, 362 (1954)
- [33] R. Bozorth, Phys. Rev. 96, 311 (1954)
- [34] Y. Barnier, P. Pauthenet, G. Rimet, Compt. Rend. 252, 3024 (1961)
- [35] H.E. Nigh, S. Legvold, F.H. Spedding, Phys. Rev. 132, 1092 (1963)
- [36] R.M. Moon, W.C. Koehler, J.W. Cable, H.R. Child, Phys. Rev. 135, 997 (1972)
- [37] W.D. Corner, W.C. Roe, K.N.R. Taylor, Proc. Phys. Soc. 80, 927 (1962)
- [38] C.D. Graham, J. Phys. Soc. Japan 17, 1310 (1962)
- [39] W.D. Corner, R.K. Tanner, J. Phys. 69, 627 (1976)
- [40] J.W. Cable, E.O. Wollan, Phys. Rev. 165, 733 (1968)
- [41] I.I. Gurevich, A.I. Klimov, V.N. Maiorov, E.A. Meleshko, B.A. Nikolskii, A.V. Purogov, V.S. Roganov, V.I. Selivanov, V.A. Suetin, Sov. Phys. JETP 42, 741 (1976)
- [42] J.R. Banister, S. Legvold, F.H. Spedding, Phys. Rev. 94, 1140 (1954)
- [43] P. Jena, K.S. Singwi, R.M. Nieminen, Phys. Rev. 13, 17, 301 (1978)
- [44] L. Bostrom, B. Johnson, G. Carlsson, E. Karlsson, Physica Scripta 3, 183 (1971)
- [45] E. Daniel, J. Friedel, J. Phys. Chem. Solids 24, 1601 (1963)
- [46] A. Blandin, I.A. Campbell, Phys. Rev. Lett. 31, 51 (1973)
- [47] P. Jena, D.J.W. Geldart, Solid State Comm. 15, 139 (1974)
- [48] P.F. Meier, Solid State Comm. 27, 1163 (1978)

- [49] M. L. G. Foy, N. Heimann, W. J. Kossler, C. E. Stronach, Phys. Rev. Lett. 30, 1064 (1973)
- [50] I. I. Gurevich, A. N. Klimov, V. N. Maiorov, E. A. Meleshko, B. A. Nikolskii, V. S. Roganov, V. I. Selivanov, V. A. Suetin, Sov. Phys. JETP 39, 178 (1974)
- [51] I. I. Gurevich, A. I. Klimov, V. H. Maiorov, E. A. Meleshko, B. A. Nikolskii, A. V. Pirogor, V. I. Selivanov, V. A. Suetin, JETP Lett. 18, 332 (1973)
- [52] Thermophysical Properties of matter, Vol 12 (ETHZ-Bibliothek 721984:12 q)
- [53] C. G. Shull, H. A. Mook, Phys. Rev. Lett. 16, 184 (1966)
- [54] C. G. Shull: In Magnetic and Inelastic Scattering of Neutrons by Metals, ed. by T. J. Rowland and P. A. Beck (Gordon and Breach, New York 1968) p. 15
- [55] A. Abragam, The Principles of Nuclear Magnetism (Oxford University Press. London 1971)
- [56] A. Seeger in Hydrogen in Metals I, Topics in Applied Physics Vol 28. Ed. G. Alefeld and J. Völkl (Springer-Verlag Berlin/Heidelberg/New York) p. 371
- [57] J. Völkl, G. Alefeld, Diffusion in Solids-Recent Developments, Ed. A. S. Nowick und J. J. Burton, Academic Press, New York und London 1975
- [58] C. P. Flynn, Point Defects and Diffusion (Oxford 1972)
- [59] C. P. Flynn, A. M. Stoneham, Phys. Rev. B1, 3966 (1970)
- [60] K. W. Kehr, Diffusion von Wasserstoff in Metallen, Jülich-Rep. 1211 (1975)
- [61] I. I. Gurevich, A. N. Klimov, V. N. Majorov, E. A. Meleshko, B. A. Nikolskii, V. S. Roganov, V. I. Selivanov, V. A. Suetin, ZhETF Pis. Red. 18, No. 9, 564 (1973) (JETP Lett. 18, 332 (1973))
- [62] B. D. Patterson, K. M. Crowe, F. N. Gygax, R. F. Johnson, A. M. Portis, J. H. Brewer, Phys. Lett. 46A, 453 (1974)
- [63] K. Nagamine, S. Nagamiya, O. Hashimoto, N. Nishida, T. Jamazaki, Hyperfine Interactions 1, 517 (1976)
- [64] M. Camani, F. N. Gygax, W. Rüttg, A. Schenck, H. Schilling, Physics Letters 60A, 439 (1977)
- [65] H. A. Mook, Phys. Rev. 148, 495 (1966)
- [66] B. D. Patterson, L. M. Falikov, Solid State Comm. 15, 1509 (1974)
- [67] K. G. Petzinger, Hyperfine Interactions 4, 307 (1978)

Verdankungen

Zum Schluss möchte ich all jenen meinen herzlichen Dank aussprechen, die diese Arbeit unterstützt haben.

Mein Dank gebührt insbesondere Herrn Prof. Dr. W. Kündig für das interessante Thema sowie sein stetes Interesse und nicht zuletzt die grosse Geduld, die er dieser Arbeit entgegenbrachte.

Meinen Kollegen Dr. P.F. Meier und Dr. B.D. Patterson vom Physikalischen Institut der Universität Zürich danke ich für viele fruchtbare und anregende Diskussionen. Meinen Kollegen an der Universität Konstanz, insbesondere Herrn Prof. Dr. E. Recknagel möchte ich für ihr Verständnis in der Endphase der Arbeit danken. Danken möchte ich auch allen Mitarbeitern der verschiedenen μ SR-Gruppen am SIN für ihre Kameradschaft und Hilfsbereitschaft, auch wenn manchmal hart um die zur Verfügung stehende Strahlzeit gekämpft wurde.

Nicht zuletzt möchte ich aber auch meiner Frau Evelyne für ihr Verständnis danken, wenn das liebevoll zubereitete Nachtessen oft kalt wurde.

Lebenslauf

Heinz Max Graf von Grub (AR)

20. 5. 1942 geb. in Heiden (AR)
- 1949-1955 Primarschule und
- 1955-1958 Sekundarschule in Heiden (AR)
- 1958-1961 Kantonsschule in Trogen (AR)
- 1961 Maturität Typus C
- 1964-1971 Studium mit Hauptfach Physik an der Philosophischen
Fakultät II der Universität Zürich
- Mai 1971 Diplom als Naturwissenschaftler mit Hauptfach Physik
- 1972 Stipendienaufenthalt am CERN in Genf
- 1973-1977 Dissertation am Physikalischen Institut der Universität
Zürich unter Anleitung von Prof. Dr. W. Kündig
- seit 1977 Wissenschaftlicher Mitarbeiter an der Fakultät für Physik
der Universität Konstanz bei Prof. Dr. E. Recknagel

Während des Studiums besuchte ich Vorlesungen, Uebungen und Praktika bei folgenden Dozenten der Universität Zürich:

Bambauer, Bauknecht, Benn, Brinkmann, Brun, Bühlmann, Burri, Eugster, Gut, Heitler, Kall, Karrer, Keller, Kundert, Kündig, Künzi, Laves, Locher, Ludwig, Maissen, P.F. Meier, V. Meyer, Müller, Oswald, Rasche, Reichart, Staub, Thellung, Truöl, V.d. Waerden, Waldner.

